

**Resonatorinterne Absorption
und nichtlineare Dynamik von
Multimode - Lasersystemen**

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig - Maximilians - Universität
München

vorgelegt von
Harald Atmanspacher
aus Witzenhausen

München, den 4. November 1985

Resonatorinterne Absorption und nichtlineare Dynamik von Multimode - Lasersystemen

Dissertation

der Fakultät für Physik

der Ludwig - Maximilians - Universität
München

vorgelegt von

Harald Atmanspacher

aus Witzenhausen

München, den 4. November 1985

1. Gutachter: Prof. Dr. Joachim Trümper
 2. Gutachter: Prof. Dr. Heinz W. Schrötter
- Tag der mündlichen Prüfung: 15. 5. 1986

Inhalt

ERSTER TEIL : RESONATORINTERNE ABSORPTION

1. Überblick: Anwendungen und gegenwärtiges Verständnis	1
2. Theoretisches Modell	5
2.1 Das Ratengleichungssystem	5
2.2 Grenzfall ungesättigter Absorption	12
2.3 Intensitätsfluktuationen in Multimode - Lasersystemen	14
3. Numerische Rechnungen	20
3.1 Ungesättigte Absorption	20
3.2 Gesättigte Absorption	22
4. Experimenteller Teil	27
4.1 Nachweismethoden für resonatorinterne Absorption	27
4.2 Experimenteller Aufbau	29
4.3 Kleine Absorptionskoeffizienten: O_2 (b - X) - System	31
4.4 Große Absorptionskoeffizienten: I_2 (B - X) - System	33
5. Resultate und Diskussion	34
5.1 Modenlebensdauer und spektrale Leistungsdichte	34
5.2 Quantitative Bestimmung der Modenlebensdauer	38
5.3 Absolutbestimmung kleiner Absorptionskoeffizienten	42
5.4 Empfindlichkeit und Sättigung der Absorption	45
6. Die wesentlichen Mechanismen der Empfindlichkeit resonatorinterner Absorption	51

7. Resonatorinterne Doppelresonanz	54
7.1 Experimentelle Details	55
7.2 Diskussion der Doppelresonanzspektren	57

ZWEITER TEIL : DYNAMIK VON MULTIMODE - LASERN

8. Bemerkungen zur Dynamik dissipativer Systeme	63
8.1 Konservative und dissipative Strukturen	63
8.2 Stabilität in dissipativen Strukturen	69
8.3 Instabilitäten und die Rolle von Fluktuationen	73
8.4 Rauschen in multistabilen und chaotischen Systemen	77
9. Der Laser als dissipatives System	82
10. Modenlebensdauern in cw Multimode - Lasern	86
10.1 Modenlebensdauern als Modenkorrelationszeiten	86
10.2 Modenlebensdauern als selbstbezügliche Größen	88
11. Experimentelle Bestimmung allgemeiner Systemparameter von Lasern	92
11.1 Messung von Modenkorrelationszeiten	92
11.2 Bestimmung von fraktaler Dimensionalität und Kolmogorov - Entropie	94
12. Dynamik von Multimode - Lasern	102
12.1 Instabilitäten bei kleinen spektralen Leistungsdichten	102
12.2 Verhalten bei hohen spektralen Leistungsdichten	112

ERSTER TEIL:

RESONATORINTERNE ABSORPTION

Das zeitabhängige Verhalten eines cw - Multimode - Farbstofflasers mit resonatorinternem Absorber wurde theoretisch wie auch experimentell untersucht. Für die Theorie wurde ein Ratengleichungsansatz verwendet, der den Einfluß von Sättigungseffekten im Fall großer Absorptionskoeffizienten berücksichtigt. Zusätzlich wurden stochastische Langevin - Kräfte betrachtet, die mit wachsender Photonenzahl zu erheblichen Intensitätsfluktuationen in den einzelnen Moden führen. Die Lebensdauer einzelner Moden hängt durch diese Fluktuationen von der spektralen Leistungsdichte im Resonator ab. Die theoretischen Überlegungen wurden im Fall ungesättigter Absorption anhand der γ - Bande des molekularen Sauerstoffes (O_2) verifiziert. Es wurde gezeigt, daß die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption grundlegend von der Modenlebensdauer abhängt und mit einem modifizierten Beerschen Gesetz beschrieben werden kann. Eine Methode zur quantitativen Bestimmung sehr kleiner Absorptionskoeffizienten wurde vorgeführt. Der Fall gesättigter Absorption wurde anhand von molekularem Iod (I_2) untersucht. Hier ist die Empfindlichkeit des Verfahrens zusätzlich vom Sättigungsgrad des Absorbers abhängig. Die verschiedenen Mechanismen, die die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption bestimmen, wurden zusammenfassend diskutiert. Als interessante Anwendung wurde im sichtbaren Spektralbereich resonatorinterne Doppelresonanz am atmosphärischen Wasserdampf (H_2O) demonstriert.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

1. Überblick: Anwendungen und gegenwärtiges Verständnis

Die resonatorinterne Absorptionsspektroskopie ist ein Verfahren, mit dem sich außergewöhnlich hohe Empfindlichkeiten erreichen lassen. Die kleinsten mit diesem Verfahren bisher nachgewiesenen Absorptions - Koeffizienten gehen bis zu 10^{-10} cm^{-1} hinunter (Kachanov und Plakhotnik 1983). Dem entspricht in atomaren Systemen unter Normalbedingungen ($\simeq 1 \text{ amagat}$) eine Übergangs - Oszillatorenstärke von der Größenordnung 10^{-18} .

1970 beobachteten Pakhomycheva *et al.* am Moskauer Lebedev - Institut erstmals im Emissionsspektrum eines Neodym - Glas Lasers Absorptionsstrukturen, die sie auf schwache Etaloneffekte im Resonator zurückführen konnten. Am Beispiel von NH_3 und CH_4 wiesen sie mit der gleichen Methode molekulare Absorptionslinien nach. Kurz darauf zeigten Peterson *et al.* 1971 am NBS Washington, daß Absorptionslinien von Na - Dampf bzw. I_2 resonatorintern bei wesentlich geringeren Konzentrationen nachweisbar sind als außerhalb des Resonators.

Mit den bis dahin verwendeten gepulsten Lasersystemen ließen sich im Vergleich zu externer Absorption Empfindlichkeitssteigerungen bis zu einem Faktor 1000 erreichen (Belikova *et al.* 1972, Keller *et al.* 1972). Haensch *et al.* gelang 1972 mit einem cw - Farbstofflaser bereits eine Steigerung um einen Faktor 10^5 .

In der Folgezeit wurde die Leistungsfähigkeit des Verfahrens in zahlreichen Anwendungen unter Beweis gestellt. (Von Burakov wurden 1981 vor allem die diesbezüglichen sowjetischen Arbeiten zusammengestellt.)

Die *Analyse von Molekülspektren mit sehr kleinen Linienstärken* ist eine der naheliegendsten Anwendungen. Die ersten Experimente hierzu galten dem atmosphärischen Wasserdampf, der in offenen Resonatoren ohnehin immer vorhanden ist. Stellvertretend für die zahlreichen Arbeiten am H_2O seien diejenigen von Antonov *et al.* 1975 und Baev *et al.* 1975 erwähnt, in denen Übergänge zu höheren Vibrationsniveaus des elektronischen Grundzustandes beobachtet wurden. 1977 wurden von Bray *et al.* die magnetischen Dipolübergänge der (2-0) - Bande (γ - Bande) des O_2 (b - X) - Systems resonatorintern nachgewiesen. Hill *et al.* gelang 1980 die Beobachtung der schwächeren (3-0) - Bande. Von Atkinson *et al.* wurde

1977 resonatorinterne Absorption von NO_2 im blauen und roten Spektralbereich publiziert. Antonov *et al.* zeigten 1979 Spektren von NH_3 und CH_4 zwischen 605 nm und 645 nm, wobei jedoch viele Linien nicht aufgelöst werden konnten. 1980 wurden von Smith und Gelfand auf photoakustischem Wege einzelne Linien aus der (5-0) - Bande von HD nachgewiesen. Auch Obertonschwingungen von CH- und OH - Gruppen in großen Molekülen wurden untersucht (Bray und Berry 1979, Brink 1984).

Auch beim *Nachweis äußerst geringer Teilchendichten* wurde das Verfahren der resonatorinternen Absorption erfolgreich eingesetzt. Maeda *et al.* wiesen 1977 10^5 Na - Atome pro cm^3 nach. Ähnliche Empfindlichkeiten wurden z.B. von T. D. Harris und Mitchell 1980 (Fe) und Burakov *et al.* 1982 (Al, Ca) erreicht.

Spektroskopie an hochangeregten Zuständen in Plasmen wurde resonatorintern von Burakov *et al.* 1978 an Mo, Ni und Ca in Hohlkathodenentladungen und von Brink 1981 sowie Brink und Heider 1981 an Ne-, He- und H - Gasentladungen demonstriert.

Haensch *et al.* zeigten 1972 am Beispiel des I_2 , daß es mit Hilfe resonatorinterner Absorption in eleganter Weise möglich ist, *Spektroskopie an seltenen Isotopen* zu betreiben. Die dort vorgeschlagene Methode wurde in ähnlicher Weise von Datta *et al.* 1975 und Hohimer und Hargis 1979 angewandt.

Auf Grund der hohen Empfindlichkeit ist es resonatorintern möglich, kurzlebige Zwischenprodukte in chemischen Reaktionen nachzuweisen. So können Probleme der *Reaktionskinetik* mit Hilfe der resonatorinternen Absorption untersucht werden. Insbesondere wurde dies anhand des HCO - Molekülradikals demonstriert (Atkinson *et al.* 1973, Clark *et al.* 1978, Reilly *et al.* 1978, Gill und Atkinson 1979, Stoeckel *et al.* 1985). Die Anwendung resonatorinterner Absorption auf die Untersuchung von Verbrennungsprozessen wurde erstmals von Thrash *et al.* 1971 beschrieben. (Einen Überblick über die sowjetischen Arbeiten zur Reaktionskinetik findet man bei Sarkisov und Sviridenko 1981.)

Außer der resonatorintern gesteigerten Empfindlichkeit gegenüber einfacher Absorption zeigte sich, daß auch andere spektroskopische Verfahren resonatorintern an Empfindlichkeit gewinnen. Folgende Techniken wurden bereits angewandt:

1. Photoakustische Spektroskopie (erstmalig von Stella *et al.* 1976 demonstriert)
2. Polarisations - Spektroskopie (Radloff und Ritze 1979, 1980; Mak *et al.* 1982)
3. Mehrfachresonanz - Spektroskopie im IR-, MW- und RF - Spektralbereich (IR-RF: Dangoisse *et al.* 1978, 1980; IR-MW: Arimondo und Oka 1982, Oka 1982; IR-MW-RF: Ioli *et al.* 1984)
4. Linearer und nichtlinearer Raman - Effekt (Werncke *et al.* 1974, Baev *et al.* 1975, Silvera und Tommasini 1976 u.a.m.)
5. Mehrphotonenabsorption (Chen *et al.* 1977, 1978; Kowalski *et al.* 1978, Baev *et al.* 1984)

In den unter (4) und (5) erwähnten Methoden wird neben der erhöhten Nachweisempfindlichkeit auch die wesentlich höhere Intensität im Inneren des Resonators ausgenutzt.

Trotz der großen Zahl verschiedenartigster Anwendungen sind die theoretischen Grundlagen der resonatorinternen Absorption bisher noch nicht quantitativ verstanden.

Die bisher vorgeschlagenen Modelle lassen sich im Wesentlichen in zwei Gruppen einteilen:

- Als grundlegende Voraussetzung wird angenommen, daß das Lasersystem nach einer gewissen Zeit einen *Gleichgewichtszustand* erreicht. In diesem Zustand ("steady state") werden alle Größen, die die Empfindlichkeit festlegen, als zeitlich konstant betrachtet. Auf diese Weise kann man analytische Ausdrücke für die Empfindlichkeitssteigerung gegenüber der "single pass" - Absorption herleiten. Derartige Modelle wurden z.B. von Haensch *et al.* 1972, Brunner und Paul 1974, 1978 sowie von Stepanov *et al.* 1976 entwickelt. Allen Modellen dieser Art ist gemeinsam, daß *räumliche Inhomogenitäten* im Gain - Medium eine wesentliche Rolle für die Empfindlichkeit spielen. Jedoch stellten sich bei zahlreichen Experimenten die Vorhersagen der "steady state" - Modelle als unzulänglich oder sogar falsch heraus (viele der beobachteten Widersprüche sind bei S. J. Harris 1979 und S. J. Harris

und Weiner 1981 zusammengestellt).

- In Analogie zur Behandlung gepulster Systeme (Keller *et al.* 1972, v. Weysenhoff und Rehling 1974) wird in Arbeiten von Mitarbeitern des Moskauer Lebedev - Institutes davon ausgegangen, daß auch in cw - Lasern kein Gleichgewichtszustand erreicht wird (Baev *et al.* 1978). Dies liegt daran, daß die ungestörte *zeitliche Entwicklung* in cw - Systemen durch verschiedenartige Effekte (wie z.B. mechanische Instabilitäten) begrenzt wird. In diesem Zusammenhang wird der Begriff der *Modenlebensdauer* eingeführt, die für die Empfindlichkeit des Verfahrens von grundlegender Bedeutung ist. Das heißt zugleich, daß die Empfindlichkeit als zeitabhängige Größe zu betrachten ist. Diese Zeitabhängigkeit wurde experimentell zum ersten Mal von Antonov *et al.* 1975 und Belikova *et al.* 1975 gezeigt.

Der vorliegende Teil der Arbeit beginnt mit einem theoretischen Modell, mit dem es gelingt, Unstimmigkeiten und scheinbar widersprüchliche Phänomene zu klären, die in der Literatur beschrieben worden sind. Insbesondere wird die oft beobachtete Steigerung der Empfindlichkeit bei abnehmender Pumpleistung bzw. bei wachsender Laserbandbreite (Schwellenbedingung) geklärt. Ebenso wird die zentrale Bedeutung der Modenlebensdauer für die Empfindlichkeit der resonator-internen Absorption deutlich werden.

Dem theoretischen Modell folgen die numerischen Lösungen des Ratengleichungssystems sowie die experimentellen Ergebnisse und ihre Interpretation. Abschließend werden die wesentlichen Mechanismen zusammengestellt, die für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption verantwortlich sind.

2. Theoretisches Modell

Quantenoptische Systeme wie Laser werden durch Gleichungssysteme beschrieben, die sowohl bezüglich der Feld- als auch der Materiegleichungen quantisiert sind. In einer solchen Darstellung erhält man ein gekoppeltes System von quantenelektrodynamischen und quantenmechanischen Gleichungen. Betrachtet man die Feldgleichungen in klassischer Näherung und koppelt sie mit den quantenmechanischen Materiegleichungen, so entspricht dies einer semiklassischen Formulierung. Die erhaltenen *Maxwell - Bloch - Gleichungen* verknüpfen die Modenamplitude (elektrische Feldstärke), die Besetzungsinversion im aktiven Medium und dessen Polarisation. Durch die Vernachlässigung der Quantisierung des elektromagnetischen Feldes beinhalten die *Maxwell - Bloch - Gleichungen* keine Information über die Photonenstatistik (z.B. Fluktuationen).

Die Polarisation des aktiven Mediums eines Lasersystems kann adiabatisch eliminiert werden, wenn sie sich im Vergleich zu den anderen Größen sehr langsam ändert. Die so resultierende Näherung liefert einfache Ratengleichungen, die im Gegensatz zu den *Maxwell - Bloch - Gleichungen* keine Phaseninformation über das System enthalten.

Da im Fall von Farbstofflasern die adiabatische Eliminierung der Polarisation zulässig ist, wird zunächst von einem klassischen Ratengleichungssystem ausgegangen. In Abschnitt 2.3 wird eine “quantisierte” Form der Ratengleichungen betrachtet werden, um mit geringem Aufwand Fluktuationen des Strahlungsfeldes einführen zu können. Daher wird bereits zu Beginn an Stelle der elektrischen Feldstärke die Photonenzahl verwendet.

2.1 Das Ratengleichungssystem

Um mit Hilfe eines Ratengleichungssystems die Vorgänge zu beschreiben, die in einem Farbstofflaser mit resonatorinternem Absorber stattfinden, muß die zeitliche Änderung folgender Größen berücksichtigt werden:

- Besetzungsdichte der Farbstoffmoleküle im invertierten Medium,
- Besetzungsdichte der Absorberteilchen in den Zuständen, die an der Ab-

sorption beteiligt sind,

- Strahlungsfeld (= Photonenzahl) im Resonator.

Ähnliche Ratengleichungssysteme wurden bereits erfolgreich angewandt, um passives Q - switching und optische Bistabilität in Lasern zu beschreiben (Arimondo *et al.* 1983 und weitere Referenzen dort). Für die resonatorinterne Absorptionsspektroskopie ergeben sich jedoch im einzelnen etwas andere Näherungen. Beispielsweise kann das Gain - Medium für die Beschreibung der resonatorinternen Absorption undifferenziert betrachtet werden, während im absorbierenden Medium die verschiedenen Linienverbreiterungs - Mechanismen und eventuell Übergänge zwischen mehr als zwei Niveaus zu berücksichtigen sind. In den folgenden drei Abschnitten werden die verschiedenen Bilanzgleichungen mit ihren Besonderheiten vorgestellt.

2.1.1 Verstärkungs - Medium

Für die Behandlung des Gain - Mediums werden die folgenden Näherungen getroffen:

1. Ein wellenlängenabhängiges Gainprofil ist lediglich für den Effekt der spektralen Verengung der Laseremission von Bedeutung. Für die relative Tiefe eines Absorptionsdips, die ein Maß für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption ist, macht es keinen Unterschied, ob sich die Absorptionslinie im Maximum oder am Rand des emittierten Linienprofils befindet. Aus diesem Grund wird angenommen, daß das Strahlungsfeld in den verschiedenen Moden dem gleichen Verstärkungsfaktor ausgesetzt ist.
2. Räumliche Inhomogenitäten wie "spatial hole burning" werden im Gain - Medium nicht berücksichtigt. Wie S. J. Harris 1982 mit Hilfe numerischer Rechnungen zeigte, spielen sie im Fall eines linearen Farbstofflasers erst dann für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption eine Rolle, wenn die ungestörte zeitliche Entwicklung des Systems bis zu Zeiten von Millisekunden fortgeschritten ist. Auch Baev *et al.* wiesen 1978 darauf hin, daß räumliche Inhomogenitäten im Gain - Medium nur eine geringfügige Bedeutung für die resonatorinterne Absorption haben (siehe Abschnitt 2.2).

3. Die Anzahl der Farbstoffmoleküle im unteren Laserniveau wird vernachlässigt; die Pumprate wird als konstant angesetzt.

Damit lautet die Bilanzgleichung für das Gain - Medium:

$$\frac{dn_{inv}}{dt} = p - A_{inv}n_{inv} - B_{inv}n_{inv}E_{phot} \sum_{j=1}^M N_{phot}(j) \quad (2.1)$$

Hierbei sind:

- p = Pumprate. Sie wird aus der Pumpleistung P (Watt) dividiert durch die Energie pro Photon (Joule) berechnet. In der Pumprate wird nur der Teil der gesamten Pumpleistung berücksichtigt, der tatsächlich im Gain - Medium deponiert wird. (Unter den in Abschnitt 4 geschilderten experimentellen Gegebenheiten sind dies 80%). Die Pumprate hat die Einheit Teilchen/sec.
- A_{inv} = Einstein - A - Koeffizient für den invertierten Zustand. Für Rhodamin 6G ist $A_{inv} = 1.8 \times 10^8 \text{ sec}^{-1}$ (Ganiel *et al.* 1975).
- n_{inv} = Anzahl der Farbstoffmoleküle im invertierten Zustand. Sie ist auf das aktive Jet - Volumen bezogen und damit als absolute Teilchenzahl definiert.
- M = Modenanzahl.
- $N_{phot}(j)$ = Anzahl der Photonen in Mode j .
- E_{phot} = Energie pro Photon, das vom Gain - Medium emittiert wird. E_{phot} wird näherungsweise für die aktuelle Schwerpunkts - Wellenlänge des Gain - profils berechnet.
- B_{inv} = Einstein - B - Koeffizient für die stimulierte Emission des invertierten Zustands. Allgemein ist dieser Koeffizient definiert als:

$$B = \frac{A}{8\pi h c \nu^3} \quad (2.2)$$

In dieser Form ist ν in Wellenzahlen anzugeben und B ist normiert auf ein Wellenzahlenintervall von 1 cm^{-1} . Grundsätzlich ist B nicht auf cm , sondern auf cm^3 bezogen. Da die Photonenzahl und der B - Koeffizient sich auf den gleichen Strahlquerschnitt beziehen, genügt es, als räumlichen

Parameter die Länge zu nehmen. Um eine konsistente Normierung des B - Koeffizienten und der Photonenzahl zu erhalten, werden beide Größen auf einen cm bezogen. Dies wird dadurch erreicht, daß der in Gleichung (2.2) definierte B - Koeffizient durch die Resonatorlänge L dividiert wird. Damit ist $B_{inv} = B/L$; L beträgt im vorliegenden Fall 60 cm.

Verschiedene Gain - Parameter (wie z.B. Relaxationsprozesse zwischen invertierten Vibrationsniveaus, Triplett - Verluste, tatsächliche Linienbreite) werden - wie oben angedeutet - nicht im einzelnen berücksichtigt, sondern gehen als Gesamteffekt in Form eines empirisch ermittelten Faktors in den B - Koeffizienten ein. Dieser Faktor wird so bestimmt, daß das Verhalten des freilaufenden Lasers sowohl bezüglich der Schwellenleistung als auch bezüglich der "efficiency" korrekt beschrieben wird. Da hierbei durch *einen* zusätzlichen Faktor das Verhalten in *zwei* prinzipiell unterschiedlichen Signalbereichen richtig wiedergegeben wird, ist die Einführung eines solchen Faktors physikalisch gerechtfertigt. Unter den vorliegenden Randbedingungen ergab sich für den zusätzlichen Faktor der Wert 5.0.

2.1.2 Absorber - Medium

Im absorbierenden Medium wird zunächst im einfachsten Fall eines Zwei - Niveau - Systems angenommen, daß lediglich eine einzige Mode j' absorbiert wird. In diesem Fall lautet die Bilanzgleichung für die Besetzung des oberen Zustandes:

$$\frac{dn_2}{dt} = B_{12}(n_1 - n_2)E_{abs}N_{phot}(j') - A_{21}n_2 \quad (2.3)$$

Darin sind:

- E_{abs} = Energie des absorbierten Photons,
- n_1 (n_2) = Besetzungszahl im unteren (oberen) Zustand,
- A_{21} = Einstein - A - Koeffizient für den oberen Zustand:

$$A_{21} = \frac{8\pi^2 e^2}{mc} \times \frac{g_1}{g_2} \nu^2 \cdot f, \quad (2.4)$$

wobei ν die Energie des Übergangs in cm^{-1} , f seine Absorptions - Oszillatorenstärke und g_1 (g_2) das statistische Gewicht des unteren (oberen) Zustands bezeichnen.

- B_{12} = Einstein - B - Koeffizient für den absorbierenden Übergang. Prinzipiell ist B_{12} wie im Gain - Medium definiert. Da die Verhältnisse in einem einfachen Absorber wesentlich durchsichtiger sind als in einem komplizierten Farbstoffmolekül, kann B direkt auf die maßgebliche Linienbreite bezogen werden. Diese "Umnormierung" von B rührt daher, daß das resonatorinterne Strahlungsfeld (die Photonenzahl) ebenfalls auf ein bestimmtes Frequenzintervall zu beziehen ist. 2×10^{10} Photonen bezogen auf eine Linienbreite von 30 GHz ($= 1 \text{ cm}^{-1}$) reduzieren sich z.B. bei einer aktuellen Linienbreite von 150 MHz auf 10^8 Photonen. In der numerischen Behandlung wird diese Umnormierung im B - Koeffizienten aufgefangen. Da die Normierung eigentlich eine Normierung der Photonen pro Einheitswellenzahl ist, ist klar, daß sie sich nur auf die Laserlinienbreite, nicht aber auf die Linienbreite der Absorption auswirken wird.

Die Absorptionslinienbreite wird numerisch dadurch berücksichtigt, daß bei der vorgegebenen Diskretisierung des Problems in einzelne Moden die Photonenzahlen auf die Moden entsprechend den aktuellen Randbedingungen aufgeteilt werden. Auf diese Weise wird erreicht, daß z.B. bei einer Absorption, die lediglich die Linienbreite einer Mode besitzt, lediglich $1/M$ des resonatorinternen Strahlungsfeldes wirksam wird.

Bei breiteren Absorptionslinien ist zusätzlich in Rechnung zu stellen, ob es sich um ein homogen oder inhomogen verbreitertes Linienprofil handelt. Die Absorberbilanz, wie sie eingangs für reine Ein - Moden - Absorption formuliert wurde, ist dann folgendermaßen zu modifizieren:

Dispersionsprofil:

$$\frac{dn_2}{dt} = B_{12}(n_1 - n_2)E_{abs} \sum_{j=1}^M N_{phot}(j)f(j) - A_{21}n_2 \quad (2.5)$$

Dopplerprofil:

$$\frac{dn_2(j)}{dt} = B_{12}(n_1(j) - n_2(j))E_{abs}N_{phot}(j)g(j) - A_{21}n_2(j) \quad (2.6)$$

$f(j)$ bzw. $g(j)$ stellt die Gewichtsfunktion dar, die das jeweilige Linienprofil erzeugt. Der wesentliche Unterschied zwischen den beiden Arten der Verbreiterung besteht

darin, daß im homogenen Fall die Photonen aller Moden mit sämtlichen Absorberteilchen n_2 wechselwirken, während bei inhomogener (Doppler -) Verbreiterung die Photonen einer Mode jeweils nur mit der energetisch entsprechenden Geschwindigkeits - Komponente $n_2(j)$ von Absorberteilchen wechselwirken können.

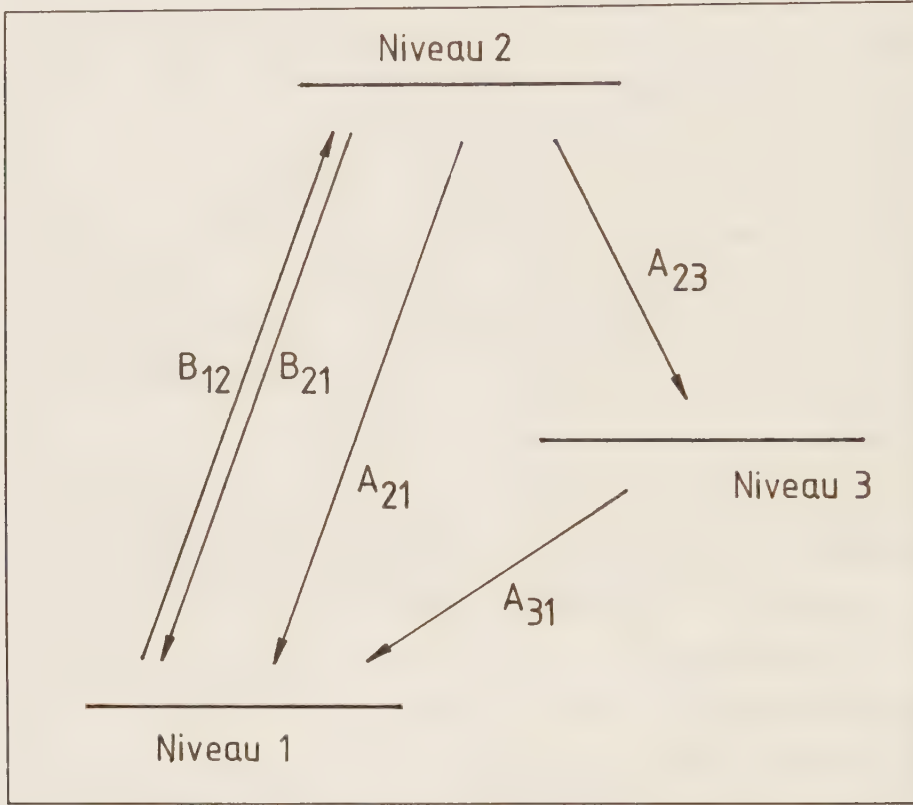


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Strahlungsprozesse in einem 3 - Niveau - System, wie sie durch die Gleichungen (2.7) - (2.9) für den Fall $B_{21} = B_{12}$ berücksichtigt werden.

In einem 3 - Niveau - System hat man im Fall einer reinen Ein - Moden - Absorption drei gekoppelte anstelle einer einzigen Absorbergleichung:

$$\frac{dn_2}{dt} = B_{12}(n_1 - n_2)E_{abs}N_{phot}(j') - n_2(A_{23} + A_{21}) \quad (2.7)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = A_{23}n_2 - A_{31}n_3 \quad (2.8)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = A_{31}n_3 + A_{21}n_2 - B_{12}(n_1 - n_2)E_{abs}N_{phot}(j') \quad (2.9)$$

Hierbei ist der Einfachheit halber stimulierte Emission zwischen den Niveaus 2 und 3 sowie 3 und 1 vernachlässigt (siehe Abbildung 2.1).

2.1.3 Photonenbilanz

Die dritte Komponente im gesamten Ratengleichungssystem beschreibt die Anzahl der Photonen pro Mode. Sie stellt die Kopplung zwischen Gain - Medium und Absorber her. Daher treten alle die Terme auf, die in der Gain- bzw. Absorberbilanz mit dem Strahlungsfeld (= Anzahl von Photonen) verknüpft sind. Bei der Photonenanzahl handelt es sich um die Anzahl von Photonen, die zu einem betrachteten Zeitpunkt im gesamten Resonator existieren. Um hieraus die resonatorinterne Strahlungsleistung (in Watt) zu berechnen, muß man über alle Photonen integrieren, die in einer Sekunde eine beliebige, aber feste Stelle des Resonators passieren.

Die Photonenbilanzgleichung für die j-te Mode lautet somit:

$$\begin{aligned} \frac{dN_{phot}(j)}{dt} = & B_{inv}n_{inv}E_{phot}(N_{phot}(j) + 1) - \\ & - \frac{N_{phot}(j)}{T_{phot}} - B_{12}(n_1 - n_2)E_{abs}N_{phot}(j') \end{aligned} \quad (2.10)$$

- Der letzte Term ist der gleiche wie in der Absorberbilanz mit umgekehrtem Vorzeichen und gibt die frequenzselektiven Verluste wieder, die auf Grund der Absorption in Mode j' entstehen. Spontane Emission im Absorber ist hierbei vernachlässigt.
- Der erste Term beschreibt die stimulierte Emission im Gain - Medium, die für das Strahlungsfeld verantwortlich ist. Als Startterm, der das "Anschwingen" des Lasers durch spontane Emission simuliert, wird einfachheitshalber $B_{inv}n_{inv}E_{phot}$ verwendet.
- $\frac{N_{phot}(j)}{T_{phot}}$ beschreibt die Breitbandverluste im Resonator. Die Photonen - Lebensdauer T_{phot} ist gegeben durch die Beziehung

$$T_{phot} = \frac{L}{c \cdot \sigma} \quad , \quad (2.11)$$

wobei σ die Breitbandverluste pro Resonatordurchlauf definiert. Hierin sind Auskoppelverluste, Beugungsverluste, Streuverluste etc. enthalten. Für den oben genannten Farbstofflaser mit resonatorinterner Absorptionszelle wird ein typischer Wert von 10 Prozent angenommen. Bei einer Resonatorlänge von 60 cm ist dann $T_{phot} = 20 \text{ nsec}$.

2.2 Grenzfall ungesättigter Absorption

Das beschriebene Ratengleichungssystem unterscheidet sich von demjenigen, das bisher allgemein verwendet wurde, in erster Linie dadurch, daß die Absorption durch eine eigene Bilanzgleichung beschrieben wird. Der physikalische Grund hierfür ist die stimulierte Emission im Absorber, deren Zeitabhängigkeit explizit berücksichtigt wird (siehe Abschnitt 3.2). Fast alle bisher formulierten Ratengleichungssysteme für resonatorinterne Absorption behandelten dagegen die Absorption als zeitunabhängigen Verlustterm in der Photonenbilanz. Lediglich Tohma 1976 berücksichtigte den Absorber in einer separaten Bilanzgleichung. Seine numerische Analyse beschränkt sich jedoch auf den Fall gleicher Absorptionsquerschnitte in Gain - Medium und Absorber.

Wenn der Absorptions - Querschnitt eines betrachteten Überganges groß bzw. die Absorber - Teilchendichte klein ist, so können Sättigungsphänomene (eventuell bis zum völligen Ausbleichen) eintreten, die bewirken, daß der Absorptions - Koeffizient sich zeitlich entsprechend den zeitabhängigen Besetzungsdichten im Absorber ändert. Ein Beispiel für ein solches Verhalten ist das Q - switching mit sättigbaren Absorbern. Man kann daher in Abhängigkeit von den genannten Absorber - Parametern die beiden Grenzfälle ungesättigter und gesättigter Absorption unterscheiden.

Im gesättigten Fall ist das Ratengleichungssystem in seiner oben angegebenen Form zu integrieren.

Für den ungesättigten Fall ist es zulässig, den Absorptionsterm in der Photonenbilanz als einen konstanten selektiven Verlust in einer oder mehreren Moden zu behandeln. Damit entfällt zugleich die Absorber - Bilanzgleichung, und man hat lediglich ein Gleichungssystem für das Gain - Medium und die Photonenbilanz

zu lösen.

Die meisten der sowjetischen Arbeiten zur resonatorinternen Absorption behandeln den Bereich ungesättigter Absorption. Die für das Verständnis grundlegende Arbeit hierzu stammt von Baev *et al.* 1978. Dort wird unter der Annahme, daß die Inversion sich nach der Einschwingphase des Systems nicht mehr ändert ($dn_{inv}/dt = 0$; "adiabatische" Näherung), ein System von j Differentialgleichungen für j Moden entwickelt, das eine übersichtliche Interpretation ermöglicht. Eine Abschätzung der Einflüsse von spontaner Emission und von räumlichen Inhomogenitäten im Gain - Medium zeigt, daß der Beitrag der räumlichen Inhomogenitäten sogar im Grenzfall des "steady state" in der Photonenbilanz um ca. drei Größenordnungen unter dem Beitrag der spontanen Emission liegt. Diese Abschätzung ist für typische Farbstofflaser- Parameter durchgeführt.

Die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption wird demnach durch die spontane Emission begrenzt und liegt bei 10^{-11} cm^{-1} bis 10^{-12} cm^{-1} . Sie wurde bereits von Belikova *et al.* 1972 angegeben.

Das wesentliche Ergebnis der Arbeit von Baev *et al.* 1978 ist die Ableitung eines modifizierten Beerschen Gesetzes für die resonatorinterne Absorption. Anstelle der klassischen Absorptions - Weglänge wird eine Weglänge benutzt, die sich aus dem Produkt von Lichtgeschwindigkeit c , Entwicklungszeit t des Modensystems und dem Verhältnis von Absorptionszellen- zu Resonatorlänge l/L ergibt. Sie beschreibt die effektive Länge der Wechselwirkung zwischen Lasermode und Absorber. Mit I als Intensität der absorbierten Mode, I_0 als Intensität der Mode im absorptionsfreien Fall und κ als Absorptions - Koeffizient in cm^{-1} lautet das modifizierte Absorptionsgesetz:

$$I(t) = I_0 \cdot \exp(-\kappa c t l / L) \quad (2.12)$$

I/I_0 stellt eine *relative Diptiefe* dar, deren natürlicher Logarithmus der effektiven optischen Dicke $\kappa c t l / L$ des Systems entspricht.

Zugleich ergibt sich für die zeitliche Entwicklung der Linienbreite der Laseremission ein Gesetz der Form:

$$\gamma(t) = \Gamma \cdot \sqrt{\frac{t_{mode}}{t}} \quad , \quad t \leq t_{mode} \quad (2.13)$$

Dabei ist t_{mode} die mittlere Lebensdauer der Moden unter den jeweiligen experimentellen Randbedingungen. Γ ist die Laserlinienbreite nach der Zeit t_{mode} und $\gamma(t)$ die Laserlinienbreite zum Zeitpunkt t (siehe Baev *et al.* 1978). Experimentell wurde diese spektrale Verengung oft beobachtet, im Zusammenhang mit resonatorinterner Absorption erstmals von Antonov *et al.* 1975. (Zur Theorie siehe auch Meyer und Flamant 1976.)

Entscheidend für die Überlegungen, die den Gleichungen (2.12) und (2.13) zugrundeliegen, ist die Annahme, daß das Modensystem auf Grund von mechanischen Instabilitäten (Jet, Resonator), Verunreinigungen der Luft und anderen "Störmechanismen" (siehe Abschnitt 2.3) nicht beliebig lange ungestört existenzfähig ist. Im Mittel wird sich eine durchschnittliche Modenlebensdauer t_{mode} einstellen, bis zu der sich das System entwickeln kann. Nach dieser mittleren Modenlebensdauer startet das System erneut bei $t = 0$.

Typische Modenlebensdauern in cw - Systemen liegen je nach experimentellen Verhältnissen im Bereich zwischen 10 μ sec und einigen Millisekunden (S. J. Harris 1982, Baev *et al.* 1978). Der erste eindeutige experimentelle Nachweis der begrenzten Modenlebensdauern gelang Baev *et al.* 1980.

2.3 Intensitätsfluktuationen in Multimode - Lasersystemen

In Arbeiten von Mironenko und Yudson 1980 sowie von Kovalenko 1981 wird mit Hilfe des Fokker - Planck - Formalismus bzw. des Langevin - Formalismus eine Betrachtung der Fluktuationen sowohl in den einzelnen Moden als auch in der Gesamtintensität eines Multimode - Lasersystems durchgeführt.

Besonders durchsichtig ist die Darstellung solcher Intensitäts - Fluktuationen in der Arbeit von Kovalenko 1981. Dort werden die klassischen Ratengleichungen für die Inversion und für die Photonenzahl pro Mode durch (ebenfalls klassische) stochastische Langevin - Kräfte $F(t)$ ergänzt, die quantenstatistische Fluktuationen (im wesentlichen spontane Emission) simulieren. Die Berücksichtigung eines Absorbers ist für die folgenden Betrachtungen unwesentlich. Daher werden die

entsprechenden Beiträge in den Ratengleichungen vernachlässigt und es bleibt:

$$\frac{dn_{inv}}{dt} = p - A_{inv}n_{inv} - B_{inv}n_{inv}E_{phot} \sum_{j=1}^M N_{phot}(j) + F_n(t) \quad (2.14)$$

$$\frac{dN_{phot}(j)}{dt} = B_{inv}n_{inv}E_{phot}(N_{phot}(j) + 1) - \frac{N_{phot}(j)}{T_{phot}} + F_j(t) \quad (2.15)$$

Dieses klassische Ratengleichungssystem ist äquivalent zu den quantenmechanischen Bewegungsgleichungen (Lax 1968, Haken 1983c). Räumliche Inhomogenitäten sind darin vernachlässigt.

Da im Falle eines cw - Farbstofflasers die Lebensdauer der angeregten Farbstoff - Moleküle klein gegenüber der Photonenlebensdauer ist, läßt sich in "adiabatischer Näherung" $dn_{inv}/dt = 0$ setzen. Die Gültigkeit dieser Annahme bestätigt, abgesehen von der Einschwingphase, die numerische Integration des exakten Ratengleichungssystems. In der adiabatischen Näherung erhält man aus (2.14) und (2.15) eine resultierende Gleichung für $dN_{phot}(j)/dt$.

Der nächste Schritt besteht in einer Linearisierung des Problems, wobei üblicherweise die interessierende Observable (hier $N_{phot}(j)$; künftig als N_j abgekürzt) um einen "Arbeitspunkt" $\langle N_j \rangle$ entwickelt wird. (Eine gute Darstellung der mathematischen Formalismen, die im Zusammenhang mit diesem Verfahren verwendet werden, findet man für den Single - Mode - Fall bei Lax 1967.) Man erhält dann die zeitliche Ableitung der Schwankungen $\Delta N_j = N_j - \langle N_j \rangle$:

$$\frac{d(\Delta N_j)}{dt} = -\alpha_j(\Delta N_j) - \beta_j \sum_{j=1}^M (\Delta N_j) + F_j(t) \quad (2.16)$$

Hierbei sind α_j und β_j Koeffizienten, die sich aus der Umformung von dN_j/dt nach $d(\Delta N_j)/dt$ ergeben. Da die α_j sich im weiteren Verlauf als besonders wichtig erweisen werden, seien sie bereits an dieser Stelle explizit angegeben:

$$\alpha_j = \frac{B_{inv}p}{A_{inv} \langle N_j \rangle (1 + \langle I \rangle B_{inv}/A_{inv})}, \quad (2.17)$$

wobei $\langle I \rangle = \sum \langle N_j \rangle$ ist und B_{inv} für alle Moden als gleich angenommen wurde.

Mit Gleichung (2.16) hat man ein Langevin - Gleichungssystem, das die zeitliche Änderung der Photonenzahl - Schwankungen in den einzelnen Moden beschreibt. Im übrigen ist $F_n(t)$ gegenüber $F_j(t)$ vernachlässigt worden, d.h. die Fluktuationen im Gain - Medium werden vernachlässigt gegenüber den Fluktuationen des Strahlungsfeldes.

Durch Summation von (2.16) über alle j Moden verschafft man sich eine weitere Langevin - Gleichung für die zeitliche Änderung der Fluktuationen bezüglich der Gesamtphotonenzahl:

$$\frac{d(\Delta I)}{dt} = -\Lambda(\Delta I) + F(t), \quad (2.18)$$

wobei $\Delta I = \sum(\Delta N_j)$, $F(t) = \sum F_j(t)$ und $\Lambda = \sum \beta_j$ sind. Die α_j dürfen vernachlässigt werden, da sie sehr klein gegenüber Λ sind (Kovalenko 1981). In der Tat stellt sich heraus, daß die Fluktuationen der Gesamtphotonenzahl von den α_j unabhängig sind.

Mit den Ansätzen $\Delta N_j = a_j \cdot \exp(\lambda t)$ und $\Delta I = b \cdot \exp(\lambda t)$ erhält man für die Eigenwerte λ aus (2.16) und (2.18) die Gleichungen:

$$(\lambda + \alpha_j)a_j + \beta_j b = 0 \quad (2.19)$$

$$(\lambda + \Lambda)b = 0 \quad (2.20)$$

Daraus ergibt sich sofort $\lambda = -\Lambda$ bzw. $\lambda = -\alpha_j$. Damit erhält man nach Integration von (2.16) und (2.18) analytische Lösungen für die Fluktuationen der Gesamtphotonenzahl sowie der Photonenzahl pro Mode. Um das zeitliche Verhalten dieser Fluktuationen und ihre gegenseitigen Abhängigkeiten im Detail interpretieren zu können, untersucht man nun die Korrelationsfunktionen für die Fluktuationen. Drei dieser Korrelationsfunktionen sind für die folgenden Überlegungen wesentlich, nämlich:

- die Autokorrelation der Fluktuationen ΔI der Gesamtintensität:

$$\langle \Delta I(t) \Delta I(t + \tau) \rangle = \frac{\langle I \rangle}{2(\eta - 1)} \exp(-\Lambda \tau) \quad (2.21)$$

- die Kreuzkorrelation der Fluktuationen ΔN_j in Mode j mit der Summe der Fluktuationen in den übrigen Moden $i \neq j$:

$$\begin{aligned}
& \langle \Delta N_j(t) \sum_{i \neq j} \Delta N_i(t + \tau) \rangle = \\
& = -\frac{\langle N_j \rangle^2}{2} \exp(-\alpha_j \tau) + \frac{\langle N_j \rangle}{2(\eta - 1)} \exp(-\Lambda \tau) \quad (2.22)
\end{aligned}$$

- die Autokorrelation der Fluktuationen ΔN_j in Mode j :

$$\begin{aligned}
& \langle \Delta N_j(t) \Delta N_j(t + \tau) \rangle = \\
& = +\frac{\langle N_j \rangle^2}{2} \exp(-\alpha_j \tau) + \frac{\langle N_j \rangle^2}{2 \langle I \rangle (\eta - 1)} \exp(-\Lambda \tau) \quad (2.23)
\end{aligned}$$

η ist dabei das Verhältnis von Pumprate p zu Schwellenpumprate p_{thr} .

Abschätzungen von Λ und α_j ergeben, daß Λ die größte Lösung der Gleichungen (2.19) und (2.20) ist. Weiter ist experimentell gesichert, daß die Gesamtphotonenzahl gemäß (2.21) nur sehr schwach mit der kleinen Zeitkonstanten Λ^{-1} fluktuiert. Dies gilt im Single - Mode - Fall natürlich genauso für die Photonenzahl der einzigen Mode.

Die Eigenwerte α_j sind im Single - Mode - Fall identisch Null; sie beschreiben demnach die realen Verhältnisse im Multimode - Betrieb. Sie tauchen somit nur in den Korrelationsfunktionen auf, die diejenigen Fluktuationen beschreiben, welche sich vom Single - Mode - Fall unterscheiden. So enthält die Autokorrelationsfunktion der Gesamtphotonenzahl (Gleichung (2.21)) keine α_j - Abhängigkeit. In den Gleichungen (2.22) und (2.23) beschreiben die α_j ein langsames exponentielles Abklingen (schwache Dämpfung) der α - Fluktuationen. Aus Stabilitätsbetrachtungen (Haken 1983c, Kap.VI.7,8) folgt, daß sie nur schwach stabile Lösungen des Gleichungssystems (2.16) und (2.18) liefern.

Die " α - Fluktuationen" sind zwischen den Moden antikorreliert; d.h. wenn eine Mode j in Gleichung (2.23) eine positive α - Fluktuation aufweist, so liefert die Kreuzkorrelationsfunktion (2.22) der Fluktuation in Mode j mit der Summe

der Fluktuationen in den übrigen Moden einen negativen Beitrag gleicher Größe. Die Korrelationsfunktion (2.21) der Fluktuationen der Gesamtphotonenzahl ist davon unbeeinflusst.

Natürlich existieren (wie im Single - Mode - Fall) in den einzelnen Moden auch “ Λ - Fluktuationen”. Sie sind phasengleich korreliert und tragen demnach additiv zur Fluktuation der Gesamtphotonenzahl bei.

Die Autokorrelationsfunktion (2.23) für die *Photonenzahl in einer Mode* ist im Zusammenhang mit der Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption besonders wichtig und wird daher im folgenden speziell betrachtet:

Der Koeffizient $\frac{\langle N_j \rangle^2}{2\langle I \rangle(\eta-1)}$ beschreibt die Amplitude der Λ - Fluktuationen. Zwei Fälle sind zu unterscheiden:

- In Schwellennähe ($(\eta - 1) \ll 1$) werden die Λ - Fluktuationen sehr groß. Dieses Resultat befindet sich in Übereinstimmung mit dem theoretischen Befund (Graham und Haken 1970), daß die Photonenstatistik an der Schwelle einen thermodynamischen Phasenübergang zweiter Ordnung von einer Bose-Einstein-Statistik zu einer Poisson-Statistik vollzieht (siehe hierzu auch Abschnitt 9).
- Oberhalb der Schwelle ist $\langle N_j \rangle \gg \langle N_{thr} \rangle$ und $(\eta - 1) \sim \langle N_j \rangle$. Hieraus erhält man für $(\langle \Delta N_j \rangle^2)_\Lambda = \langle \Delta N_j(t) \Delta N_j(t+0) \rangle$ mit

$$(\langle \Delta N_j \rangle^2)_\Lambda \sim \langle N_j \rangle \quad (2.24)$$

eine reine Poisson - Verteilung.

Der Koeffizient $\frac{\langle N_j \rangle^2}{2}$ beschreibt die Amplitude der α - Fluktuationen. Er ist oberhalb der Schwelle vom Betrag her wesentlich größer als der Koeffizient der “regulären” Λ - Fluktuationen. Die Schwankungen liegen in der Größenordnung der Photonenzahl selbst. Im Gegensatz zu (2.24) sind die α - Fluktuationen proportional zur Photonenzahl und gehorchen keiner Poisson - Statistik:

$$(\langle \Delta N_j \rangle^2)_\alpha \sim \langle N_j \rangle^2 \quad (2.25)$$

Im Rahmen einer thermodynamischen Betrachtungsweise ist dieses Resultat ein einfaches Beispiel für ein Fluktuations - Dissipations - Theorem (Callen und

Welton 1951), da in Gleichung (2.25) die Photonenzahl $\langle N_j \rangle$ als Maß für die Dissipation des Lasersystems betrachtet werden kann (siehe Abschnitt 9). Die Existenz der α - Fluktuationen wurde von Baev *et al.* 1981 mit Hilfe eines Farbzentrenlasers experimentell nachgewiesen. Die Stabilität des Modensystems gegenüber Fluktuationen steht in direktem Zusammenhang mit der Dämpfungskonstanten α_j . Je kleiner α_j ist, desto langsamer nehmen die einzelnen α - Fluktuationen im Lauf der Zeit ab. Je langsamer die einzelnen Fluktuationen abnehmen, desto größer ist die Amplitude der α - Fluktuationen zu einem bestimmten Zeitpunkt. Damit steigt die Wahrscheinlichkeit für ein Moden - "Quenching" mit abnehmendem α_j .

Aus Gleichung (2.17) läßt sich in guter Näherung folgern, daß für ein Multimode - System $\alpha_j \sim \langle N_j \rangle^{-1}$ ist. Bei zunehmender Photonenzahl pro Mode (spektraler Leistungsdichte) nimmt α ab. Aus den vorangegangenen Überlegungen folgt dann, daß bei zunehmender spektraler Leistungsdichte die Wahrscheinlichkeit steigt, daß eine Mode aufgrund von α - Fluktuationen ausstirbt. Das heißt, daß die "Lebensdauer" t_{mode} der einzelnen Moden von derartigen Fluktuations-effekten bestimmt wird, solange keine anderen Effekte überwiegen. Mit anderen Worten: Die Modenlebensdauer wächst mit abnehmender spektraler Leistungsdichte. Bei der Diskussion der experimentellen Befunde (Abschnitt 5) wird dies als wesentliches Ergebnis in Erscheinung treten.

Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang die Analogie zu dem eingangs erwähnten Fall eines Zwei - Moden - Systems. Hier unterliegt die Modenintensität ebenfalls starken Schwankungen, die sich jedoch in regelmäßigen Oszillationen äußern. Die Oszillationsfrequenz wächst dabei mit steigender spektraler Leistungsdichte (Basov *et al.* 1965). Betrachtet man die Periode der Oszillation als analoge Größe zur Modenlebensdauer, so erhält man die gleiche Abhängigkeit wie in einem Multimode - System.

3. Numerische Rechnungen

Ein Spezialfall des Ratengleichungssystems aus Abschnitt 2.1 ist der Single - Mode - Fall, der bereits 1975 von Holt analytisch behandelt wurde. In diesem Fall kann keine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Moden stattfinden und die Empfindlichkeitssteigerung der resonatorinternen Absorption ist wesentlich geringer als im Multimode - Fall. Für den allgemeinen Fall des Multimode - Betriebes wird zunächst angenommen, daß die Absorption jeweils nur eine Mode betrifft, d.h. daß die Absorptionslinienbreite schmäler ist als der Modenabstand im Resonator. In diesem Fall kann das Absorptions - Linienprofil vernachlässigt werden.

Analog zu dieser Betrachtungsweise ist die phänomenologische Differenzierung von schmalbandigen und breitbandigen Absorbern (T. D. Harris 1983) zu sehen. Breitbandige Absorber lassen sich näherungsweise durch den Single - Mode - Grenzfall beschreiben, da die Wechselwirkung zwischen den Moden gegenüber der Absorption, die alle Moden zugleich betrifft, ein Effekt höherer Ordnung ist. Bei Absorbern, die schmalbandiger sind als die Bandbreite des Lasers, wird dagegen selektiv nur ein Bruchteil der Gesamtmodenzahl von der Absorption betroffen. In diesem Fall findet eine tatsächliche Umverteilung der Energie über das Gain - Medium statt. Genau in diesem Fall wird die Empfindlichkeit gegenüber der klassischen Absorption am meisten erhöht.

Für die folgende Diskussion wird zwischen den Fällen ungesättigter und gesättigter Absorption unterschieden. Das Ratengleichungssystem (2.1), (2.3), (2.10) wird dabei für den Spezialfall eines Zwei - Moden - Betriebes mit Ein - Moden - Absorption in einem Zwei - Niveau - System gelöst.

3.1 Ungesättigte Absorption

Es ist klar, daß Effekte im Lasersystem, die die Modenlebensdauer begrenzen, im vorliegenden numerischen Modell nicht auf direktem Weg zu einer entsprechend begrenzten Empfindlichkeit führen. Die Modenlebensdauer ist als Integrationszeit des Systems in Form eines freien Parameters extern vorzugeben.

Die zeitliche Entwicklung des Ratengleichungssystems zeigt Abbildung (3.1).

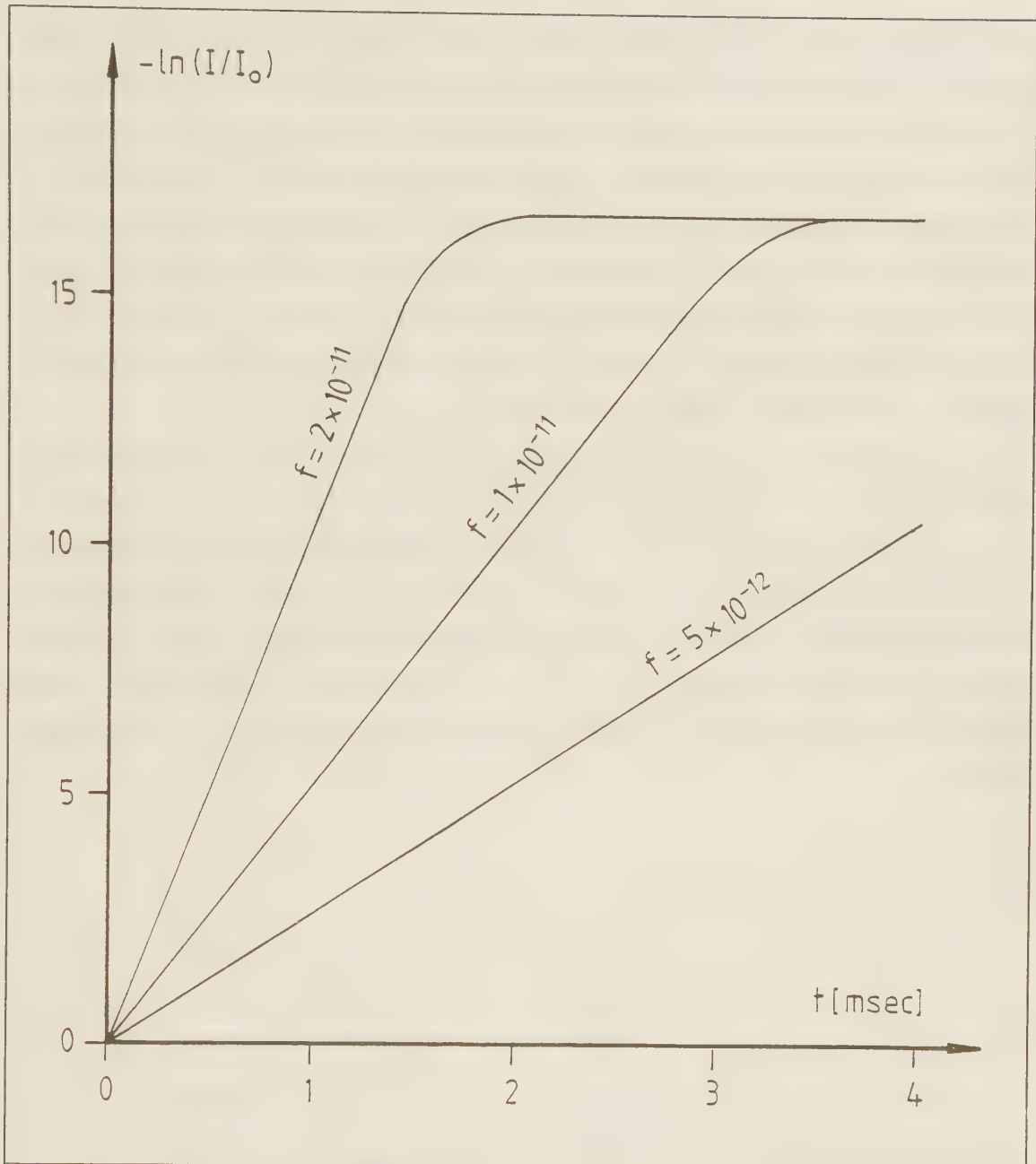


Abbildung 3.1: Modellrechnungen für drei verschiedene Absorptions - Oszillatorenstärken f im Fall ungesättigter resonatorinterner Absorption ($n = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Die Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ ist als Funktion der Integrationszeit des Ratengleichungssystems dargestellt. Der linear ansteigende Teil der Kurven repräsentiert den Gültigkeitsbereich des Beerschen Gesetzes. Die durch spontane Emission definierte Grenzemfindlichkeit ist unabhängig von f .

Der Pumpparameter P^* ist definiert als das Verhältnis von Pumpleistung P zu Schwellenpumpleistung P_{thr} . Die Gesamtteilchenzahl ist $n = n_1 + n_2$. Abbildung (3.1) zeigt, daß der negative Logarithmus der relativen Diptiefe ($S = -\ln(I/I_0)$) als Maß für die Empfindlichkeit des Verfahrens tatsächlich eine lineare Abhängigkeit

von der Zeit aufweist, wie sie das Beersche Gesetz liefert. Die Steigung der Geraden ist $\kappa cl/L$. Erst, wenn die zeitliche Entwicklung des Systems so weit fortgeschritten ist, daß in der von der Absorption betroffenen Mode die spontane Emission greift, wächst die relative Diptiefe nicht mehr weiter, sondern geht in Sättigung. Der erreichbare Grenzwert ist im ungesättigten Fall unabhängig vom Absorptions - Koeffizienten nur durch den Beitrag der spontanen Emission gegeben. Dieses auf numerischem Wege erhaltene Ergebnis zeigt sehr deutlich die Bedeutung der zeitlichen Entwicklung des Systems auf der einen Seite sowie die Unzulänglichkeit jeglicher "steady state" - Analyse andererseits.

Im ungesättigten Grenzfall verändert sich der Absorptions - Koeffizient nicht zeitlich, da (n_2/n_1) vernachlässigt werden kann. D.h., daß alle in den oberen Zustand gepumpten Absorberteilchen schneller in den unteren Zustand relaxieren als andere Teilchen nachgepumpt werden. Dieser Fall kann im Ratengleichungsmodell durch eine Photonenbilanz mit konstantem frequenzselektiven Verlust behandelt werden. Die lineare Abhängigkeit von S vom Absorptions - Koeffizienten κ gemäß dem Beerschen Gesetz kann für eine quantitative Bestimmung von κ herangezogen werden.

3.2 Gesättigte Absorption

Bereits bei Absorber - Oszillatorenstärken von $f = 10^{-8}$ können bei realistischen Teilchendichten in einem Zwei - Niveau - Absorbersystem Besetzungszahlenverhältnisse (n_2/n_1) im Promill- bis Prozentbereich entstehen, so daß für eine genaue Betrachtung die Absorptions - Sättigung miteinbezogen werden muß. Berücksichtigt man dies im Ratengleichungsmodell, so läßt sich schon hier ein ganz gering ausgeprägtes Schwellenverhalten der Empfindlichkeit in Abhängigkeit von der Pumpleistung feststellen, das mit wachsender Oszillatorenstärke immer deutlicher wird. Abbildung (3.2) zeigt sowohl die relative Besetzungsdichte (n_2/n_1) als auch $S = -\ln(I/I_0)$ für $f = 10^{-8}$ und eine Gesamtteilchenzahl von 10^{15} cm^{-3} in Abhängigkeit von der Pumpleistung $(P^* - 1)/M$ nach einer Integrationszeit von 0.1 msec.

Bei Übergängen mit großer Oszillatorenstärke kann bereits bei einem relativ geringen Strahlungsfeld (Milliwatt) Sättigung der resonatorinternen Absorption

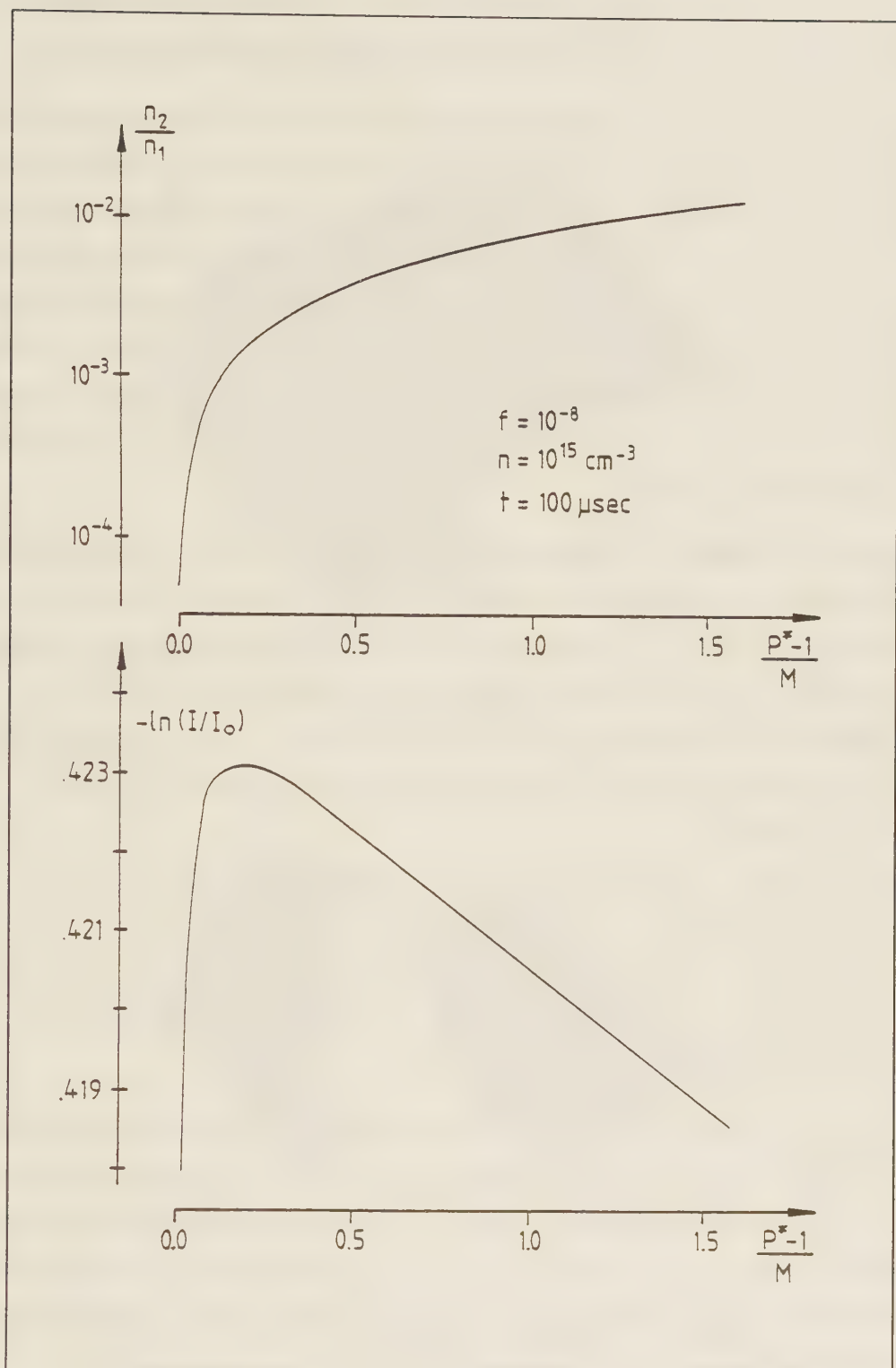


Abbildung 3.2: Modellrechnungen für schwach gesättigte resonatorinterne Absorption ($f = 10^{-8}$, $n = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, $t = 100 \mu\text{sec}$). Die relative Besetzungsdichte n_2/n_1 (oben) und die Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ (unten) sind in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte dargestellt.

auftreten, sofern die Teilchendichte nicht zu groß ist. Auf diese Möglichkeit wurde erstmals von Maeda *et al.* 1977 und Mironenko und Pack 1978 hingewiesen.

Außer der totalen Strahlungsleistung selbst ist für den Sättigungsgrad das Verhältnis von Absorptions - Linienbreite zu Bandbreite des Strahlungsfeldes maßgeblich. Der physikalisch entscheidende Parameter ist die *spektrale Leistungsdichte*. Dies wurde von Antonov *et al.* 1983 vorgeführt: Die bei verschiedenen Pumpleistungen $P^* = P/P_{thr}$ und Laserbandbreiten $\Delta\lambda$ gemessenen Empfindlichkeiten aus Harris und Weiner 1981 wurden von Antonov *et al.* auf die jeweilige Bandbreite normiert, und es ergab sich für alle verschiedenen Bandbreiten eine gemeinsame Kurve für die Empfindlichkeit in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte $(P^* - 1)/\Delta\lambda$.

Absorber mit großen Übergangsmomenten sind z.B. atomare Resonanzlinien bzw. verschiedene Moleküllinien wie solche von I_2 (mit Oszillatorenstärken von der Größenordnung $f \simeq 10^{-4}$). Es liegt nahe, daß die Steigerung der Empfindlichkeit bei abnehmender spektraler Leistungsdichte in solchen Systemen tatsächlich auf einem Ausbleiben der Sättigung im Absorber beruhen kann. Um dies zu überprüfen, wurden Rechnungen mit verschiedenen Parametern bei Oszillatorenstärken von 10^{-4} bis 1 durchgeführt.

Abbildung (3.3) zeigt als Beispiel dieser Rechnungen die Empfindlichkeit S und die relative Besetzungsdichte (n_2/n_1) als Funktion der spektralen Leistungsdichte $(P^* - 1)/M$ sowie die zeitliche Entwicklung von S bei einer Gesamtteilchenzahl von 10^9 cm^{-3} und einer Oszillatorenstärke $f = 0.65$ (Na D_2 - Resonanzlinie; angenommene Linienbreite 0.01 cm^{-1}).

Es zeigt sich deutlich, daß die Empfindlichkeit mit zunehmender spektraler Leistungsdichte bei gleicher Integrationszeit abnimmt. Ein Vergleich mit der dazugehörigen relative Besetzungsdichte (n_2/n_1) zeigt, daß die Empfindlichkeit dort am größten ist, wo (n_2/n_1) verschwindet, d.h. im ungesättigten Fall. Der Schwelleneffekt auf Grund der Sättigung der Absorption ist hier sehr viel ausgeprägter als in Abbildung (3.2).

Als wesentliche Ergebnisse der numerischen Auswertung sind für die gesättigte Absorption folgende Punkte festzuhalten:

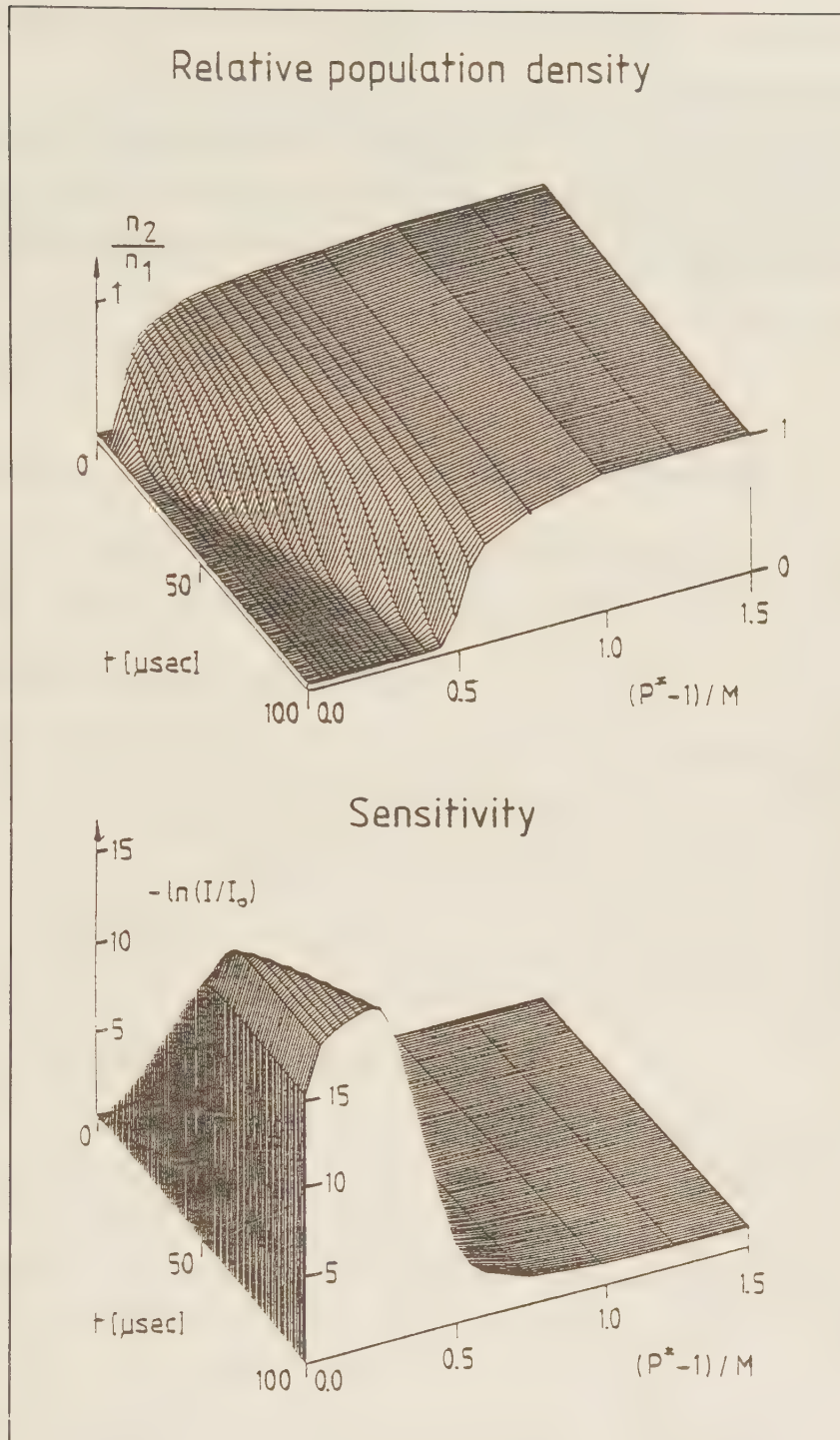


Abbildung 3.3: Modellrechnungen für gesättigte resonatorinterne Absorption ($f = 0.65$, $n = 10^9 \text{ cm}^{-3}$). Die relative Besetzungsdichte n_2/n_1 und die Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ sind in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte und von der Integrationszeit des Ratengleichungssystems dargestellt. Die erhöhte Empfindlichkeit an der Laserschwelle ist deutlich als Folge der reduzierten Sättigung der Absorption erkennbar.

1. Der Absorptions - Koeffizient ist nicht konstant, sondern ändert sich zeitlich mit der Besetzungsdichte - Differenz in den Absorberniveaus.
2. Aus der relativen Diptiefe kann lediglich der zeitabhängige Absorptions - Koeffizient ermittelt werden, der sich aus der Besetzungsdichte - Differenz ergibt. Es gilt auch hier ein modifiziertes Beersches Gesetz, in dem $\kappa = \kappa(t)$ ist.

4. Experimenteller Teil

Bevor in Abschnitt 4.2 der experimentelle Aufbau dargestellt wird, sei im folgenden ersten Abschnitt eine Übersicht über die prinzipiell möglichen Techniken zusammengestellt, mit denen resonatorinterne Absorption nachgewiesen werden kann. In den Abschnitten 4.3 und 4.4 werden Abschätzungen der für das Experiment relevanten Absorptions - Koeffizienten gegeben, die die Grundlage für die Auswertungen in Abschnitt 5 bilden.

4.1 Nachweismethoden für resonatorinterne Absorption

Resonatorinterne Absorptionsprozesse können entweder direkt oder indirekt nachgewiesen werden. Folgende Verfahren sind bekannt:

4.1.1 Direkte Absorptionsmessung

Das Laserlinienprofil wird spektral aufgelöst und die Absorptionslinien erscheinen als Dips in der Hüllkurve der Laserlinie. Maßgebliche experimentelle Parameter für den Absorptions - Koeffizienten sind hierbei die Absorptions - Linienbreite $\Delta\nu$ (cm^{-1}) und die relative Diptiefe I/I_0 , die bei breiten Laserlinien (bei den durchgeführten Messungen wurden bis zu 10 nm erreicht) sehr gut bestimmt werden kann. Um die spektrale Auflösung zu realisieren, hat man drei Möglichkeiten:

a) Durchstimmung des Nachweissystems

Dies geschieht z.B. mit Hilfe eines durchstimmbaren Monochromators. Eine etwas aufwendigere Möglichkeit ist die Verwendung eines Spektrographen in Verbindung mit Photoplatte, Photomultiplier oder Diodenarray. Für quantitative Intensitätsmessungen ist die photographische Aufzeichnung bekanntlich nur begrenzt verwendbar. Ein wesentlicher Vorteil dieser Technik der spektralen Auflösung besteht darin, daß in das Lasersystem, in dem die Absorption stattfindet, nicht eingegriffen wird. Mit Abstand die meisten experimentellen Arbeiten zur resonatorinternen Absorption basieren daher auf dieser Art der direkten Absorptionsmessung.

b) Durchstimmung des Lasersystems

Will man mit dieser Methode relativ große Durchstimmungsbereiche erzielen, so wird dies üblicherweise durch Verkippen von resonatorinternen Interferenz- bzw. Lyot - Filtern erreicht. (Erforderlich ist dann lediglich ein Nachweissystem, das den gesamten Durchstimmungsbereich abdeckt, jedoch nicht abstimmbar zu sein braucht.) Durch die beim Verkippen des Filters ständig veränderten Resonatorbedingungen kann eine eindeutige Reproduzierbarkeit von Meßergebnissen stark erschwert werden.

c) Durchstimmung des Absorbers

Mit Hilfe von elektrischen oder magnetischen Feldern ist es möglich, die zu untersuchenden Absorptionslinien spektral so zu verschieben, daß sie durch das Laseremissionsprofil laufen. (Natürlich sind die so erreichbaren Verschiebungen durch die verfügbare Feldstärke begrenzt.) Auf diese Weise kommt man dem Idealziel einer differentiellen Messung mit und ohne Absorber sehr nahe. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, Stark- bzw. Zeeman - Aufspaltungen zu untersuchen. Die Methode der Durchstimmung mit variablem Magnetfeld wurde erstmals von Davies und Evenson 1975 ("laser magnetic resonance") an freien Radikalen ausgenutzt. Der entsprechende Effekt mit elektrischen Feldern wurde 1975 von Johns und McKellar dazu benutzt, um Übergänge aus der $2\nu_2 - \nu_2$ - Bande des H_2CO nachzuweisen.

4.1.2 Indirekte Verfahren

Hierunter versteht man Verfahren, bei denen nicht die Absorptionslinien selbst registriert werden, sondern Effekte, die aus der resonatorinternen Absorption resultieren. Als Beispiel hierfür sei die bereits erwähnte Methode des Fluoreszenz - Nachweises in einer externen Zelle angegeben, die mit dem resonatorintern absorbierenden Medium gefüllt ist (Haensch *et al.* 1972). Ebenso ist es möglich, resonatorinterne Absorptionsprozesse in einer externen Zelle optogalvanisch (Zalewski *et al.* 1981) oder photoakustisch (Keller *et al.* 1983) nachzuweisen. Da in sämtlichen derartigen Verfahren außer der Absorption selbst weitere Prozesse zum Gesamteffekt beitragen, wird eine quantitative Analyse deutlich erschwert.

Neben den genannten Möglichkeiten wurden noch einige andere, spezielle Methoden vorgeschlagen: "Competing beams method" (Batische *et al.* 1976), räumliche Auflösung durch Betrachtung transversaler Moden (Crescenzi und Shirk 1977), "optical null approach" (Crescenzi und Shirk 1979) sowie resonatorinterne Absorption mit gekoppelten Resonatoren (Loloe *et al.* 1984). Für nähere Erläuterungen dieser und weiterer Methoden sei auf die Zusammenstellung von T. D. Harris 1983 verwiesen.

4.2 Experimenteller Aufbau

Ziel der vorliegenden Untersuchungen ist es, Messungen an Medien mit sowohl sehr kleinen als auch großen Absorptions - Koeffizienten durchzuführen. Damit ist es möglich, die Resultate aus den Abschnitten 2 und 3 für die beiden Grenzfälle der gesättigten und ungesättigten Absorption zu überprüfen.

Als Repräsentant für kleine Absorptions - Koeffizienten wurde die $^P P(11)$ - Linie der (2-0) - Bande des $b^1\Sigma_g^+ - X^3\Sigma_g^-$ Systems des O_2 - Moleküls ausgewählt (siehe Abschnitt 4.3). Die Messungen mit großen Absorptions - Koeffizienten wurden an ausgewählten Übergängen der (11-3)- und (9-2) - Banden des $B^3\Pi_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ - Systems von I_2 vorgenommen (siehe Abschnitt 4.4).

Um den verwendeten cw - Farbstofflaser mit gefalteter Resonatorgeometrie ($L = 60$ cm) über den erforderlichen Wellenlängenbereich abstimmen zu können, wurde mit einer optimierten Mischung aus Rhodamin 6G und Rhodamin 101 gearbeitet. Als Abstimmelement diente ein für 450 nm beschichtetes Interferenzfilter in einer sehr genau justierbaren, speziell angefertigten Dreh - Kipp - Halterung. Die Verwendung eines Interferenzfilters erwies sich als notwendig, da mit einem serienmäßigen Lyot - Filter keine genügend breiten Laseremissionslinien erzeugt werden können. (Dies ist eine Voraussetzung, um in der Laserlinie Absorptionsdips nachweisen zu können.)

Im Fall der O_2 - Absorption genügte die normale Laboratmosphäre zum Nachweis der Absorptionslinien (in diesem Fall ist $l/L = 1$). I_2 wurde in einer 10 cm langen Zelle mit Brewster - Fenstern in den Resonator gebracht, nachdem es mehrere Tage erhitzt und abgepumpt worden war, so daß Iod lediglich noch in Spuren

vorhanden sein konnte. Beide Absorptionen wurden unter normalen Umweltbedingungen (760 Torr, 25⁰C) beobachtet. Außer den serienmäßigen Spiegeln für Rhodamin 6G und dem Interferenzfilter befanden sich keine weiteren optischen Elemente im Resonator.

Um mechanische Instabilitäten möglichst gering zu halten, wurde der Farbstofflaser auf einem vibrationsfreien Tisch betrieben. Luftverunreinigungen durch Staubteilchen, die sich auf optischen Flächen absetzen oder sogar die Laseremission kurzzeitig unterbrechen können, wurden durch eine "laminar flow box" vermieden, die den gesamten Aufbau abdeckte.

Der Farbstofflaser wurde mit einem 5 Watt Argon - Ionenlaser gepumpt. Da es sich für die Experimente als wesentlich herausstellte, die Dauer der Farbstofflaser - Emission periodisch zeitlich begrenzen zu können, wurde zwischen Pump- und Farbstofflaser ein Chopperelement gestellt. Hierzu wurde ein elektrooptischer Modulator (Pockels - Zelle) bzw. für längere Pumpimpulse ein mechanischer Chopper verwendet. Die Steuerelektronik des elektrooptischen Modulators erzeugte bei einem on - off - Tastverhältnis von 1:6 Rechteckpulse. Die Anstiegs- und Abfallszeiten der Elektronik lagen bei 20 bis 40 nsec.

Die vom Farbstofflaser emittierte Strahlung wurde abgeschwächt und auf den Eintrittsspalt eines 2m - Plangitter - Spektrographen abgebildet. Die optimale Spaltbreite betrug 15 μ m. In der Plattenebene des Spektrographen wurde ein Photomultiplier mit beweglichem Spalt montiert, mit dem das Laseremissions - Spektrum abgefahren werden konnte. Der photoelektrische Nachweis geschah mit Hilfe eines Lock - In Verstärkers. Die kürzeste nachweisbare Laserimpulsdauer war durch die maximale Referenzfrequenz des Lock - In Verstärkers vorgegeben und lag bei etwa 700 nsec.

Es ist anzumerken, daß mit diesem Aufbau nicht der Zustand des Lasersystems nach Ablauf derjenigen Zeit untersucht wird, die durch die Pumpimpulsdauer definiert ist. Derartige Experimente wurden von Stoeckel *et al.* 1982 und Chenevier *et al.* 1983 durchgeführt. Dort wurde im Strahlengang zwischen Nachweissystem und Laser ein zweiter, sehr hochfrequent arbeitender akustooptischer Modulator verwendet, der durch die Impulsspannung der Pockels - Zelle mit einer wählbaren zeitlichen Verzögerung ("delay") angesteuert wurde. Da-

mit ist eine OMA - "Momentaufnahme" des Lasersystems nach einer bestimmten Verzögerungszeit möglich. Der hier verwendete Aufbau liefert dagegen eine integrale Messung. Dabei sorgt die Tatsache, daß diese Messung sich über eine Zeitspanne erstreckt, die groß gegenüber der Zeitkonstanten (= Impulsdauer bzw. Modenlebensdauer) des Lasersystems ist, dafür, daß die Messung tatsächlich einen statistischen Mittelwert liefert. Somit sind prinzipiell beide Meßverfahren gleichwertig, wobei die hier verfolgte Methode die beiden Vorteile geringeren technischen Aufwands und impliziter zeitlicher Mittelwertbildung aufweist.

4.3 Kleine Absorptionskoeffizienten: O₂ (b - X) - System

Zur experimentellen Bestätigung der Theorie resonatorinterner Absorption bei kleinen Absorptions - Koeffizienten (ungesättigter Grenzfall, siehe Abschnitte 2.2 und 3.1) wurde die ^PP(11) - Linie der (2-0) - Bande des b¹Σ_g⁺ - X³Σ_g⁻ - Systems von O₂ ausgewählt. Sie liegt bei 630.276 nm und wird weder von anderen O₂ - Linien noch von atmosphärischen Wasserdampflinien überlagert (Moore *et al.* 1966). Zusammen mit der ^PP(11) - Linie wurde jeweils die ^PQ(11) - Linie bei 630.200 nm ausgewertet. Damit ist es möglich, die gemessenen relativen Diptiefen beider Linien mit den berechneten Werten zu vergleichen. Man verschafft sich so einen Anhaltspunkt für die Güte der Messung bezüglich systematischer Fehler, die sich nicht in der Standardabweichung bemerkbar machen.

Im folgenden Abschnitt werden die Oszillatorenstärken der beiden Linien und der für die experimentellen Verhältnisse resultierende Absorptions - Koeffizient κ berechnet. Die Resultate sind dann direkt mit den nach dem Beerschen Gesetz (2.12) ermittelten experimentellen Werten vergleichbar.

Zunächst kann aus dem von Burch und Gryvnak 1967 angegebenen Einstein - A - Koeffizienten für die (0-0) - Bande und den Franck - Condon - Faktoren nach Krupenie 1972 der Einstein - A - Koeffizient für die (2-0) - Bande berechnet werden:

$$A(2-0) = 4.288 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$$

Daraus folgt mit Berücksichtigung des statistischen Gewichts 3 für den Grundzustand aus Gleichung (2.4):

$$f(2-0) = 8.475 \times 10^{-13}$$

Es bleiben die Hönl - London - Faktoren S für die beiden Linien zu berechnen. Nach Miller *et al.* 1969 und Watson 1968 ergeben sich nach Normierung auf $(2J''+1)$:

$$S(^P P(11)) = 0.2609$$

und

$$S(^P Q(11)) = 0.2545 .$$

So erhält man für die Oszillatorenstärke der $^P P(11)$ - Linie das Produkt aus Bandenoszillatorenstärke $f(2-0)$ und Hönl - London - Faktor $S(^P P(11))$:

$$f(^P P(11)) = 2.211 \times 10^{-13}$$

Der absolute Absorptions - Koeffizient in der Linienmitte ist im vorliegenden Fall definiert durch (Unsöld 1955, S. 287):

$$\kappa(^P P(11)) = 4.995 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \cdot \frac{1}{\Delta \nu} \cdot n(^P P(11)) \cdot f(^P P(11)) \quad (4.1)$$

$\Delta \nu$, die Halbwertsbreite der Linie (FWHM, in cm^{-1}), wird experimentell bestimmt. Damit bleibt als letzte Unbekannte die im unteren Niveau des Übergangs zur Verfügung stehende Teilchenzahl $n(^P P(11))$ zu berechnen.

Für einen O_2 - Anteil von 21% in der Atmosphäre, $p = 760$ Torr und $T = 300$ K ergibt sich eine O_2 - Gesamtteilchenzahl $n = 5.124 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Für die $^P P(11)$ - ($^P Q(11)$ -) Linie ist die relative thermische Besetzungsdichte $n(^P P(11))/n = 0.06262$ ($n(^P Q(11))/n = 0.05771$), wie man durch Einsetzen der Energie des unteren Rotations - Vibrations - Niveaus in den Exponenten der Boltzmann - Verteilung erhält. Unter Einbeziehung der so ermittelten thermischen Besetzungsdichte folgt:

$$n(^P P(11)) = 3.208 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

und:

$$\kappa(^P P(11)) = 3.543 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-2} \cdot \frac{1}{\Delta \nu} \quad (4.2)$$

Für einen relativen Vergleich der Absorptions - Koeffizienten von $^P P(11)$ - und $^P Q(11)$ - Linie benötigt man lediglich die Verhältnisse der thermischen Besetzungszahlen und der Hönl - London - Faktoren, da alle übrigen Parameter für beide Linien gleich sind. Das Verhältnis der Absorptions - Koeffizienten beträgt

danach:

$$\frac{\kappa(^P P(11))}{\kappa(^P Q(11))} = 0.899 \tag{4.3}$$

(Berechnet man die Hönl - London - Faktoren nach Schlapp 1932, so ergibt sich für das Verhältnis der Wert 0.904.)

4.4 Große Absorptionskoeffizienten: I₂ (B - X) - System

Für die Untersuchungen an “optisch dicken” Übergängen mit relativ großen Absorptions - Koeffizienten wurde I₂ in sehr geringer Konzentration in einer Zelle benützt. Unter Atmosphärendruck haben die einzelnen Absorptionslinien eine Halbwertsbreite von etwa 0.3 cm⁻¹. Daher sind einzelne I₂ - Linien nicht auflösbar. Für die Analyse wurde deswegen ein Linienpaar ausgewählt, bei dem der Abstand der beiden Komponenten klein gegenüber der Linienbreite der beobachteten Überlagerung ist. Die Linienpositionen und die den jeweiligen Übergang charakterisierenden Quantenzahlen sowie die Liniennummern nach Gerstenkorn und Luc 1978 sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt. (Die Quantenzahlen stammen aus einer privaten Mitteilung von Gerstenkorn 1985.)

Linie Nr.	Position (cm ⁻¹)	v ^{''}	v [']	J ^{''}	J [']
2154	16280.569	2	9	93	94
2155	16280.607	3	11	90	89

Der entsprechende Wellenlängenbereich um 614 nm ist von atmosphärischen H₂O - Linien frei (Moore *et al.* 1966), die damit als Ursache für störende Überlagerungen entfallen.

5. Resultate und Diskussion

5.1 Modenlebensdauer und spektrale Leistungsdichte

1980 gelang Baev *et al.* der experimentelle Nachweis, daß die einzelnen axialen Moden in einem Laserresonator eine begrenzte Lebensdauer besitzen. Damit wurde ein entscheidender Hinweis gegen die "steady state" - Hypothese erbracht, nach der das System im Regelfall einen Gleichgewichtszustand erreichen sollte. Im Gegenteil unterliegen die Wechselwirkungen innerhalb des gekoppelten Gain - Absorber - Systems einer zeitlichen Dynamik, die für den Grenzfall ungesättigter Absorption durch die Analyse von Baev *et al.* 1978 beschrieben wird.

Von S. J. Harris wurde 1982 das Fourier - Spektrum eines schmalen spektralen Ausschnitts der Laseremission analysiert. Bei hoher spektraler Leistungsdichte zeigte sich dabei ein Aus- bzw. Einsetzen der einzelnen Moden mit Frequenzen bis zu 100 kHz. Dies entspricht einer mittleren Modenlebensdauer von 10 μsec . Bei geringerer spektraler Leistungsdichte gehen die beobachteten Fluktuationsfrequenzen zurück.

Um die Lebensdauer der Moden im Resonator eindeutig auf den Parameter der spektralen Leistungsdichte $(P^* - 1)/\Delta\lambda$ zurückführen zu können, wurde die Abhängigkeit des negativen Logarithmus der relativen Diptiefe $S = -\ln(I/I_0)$ von der spektralen Leistungsdichte gemessen. Damit hinsichtlich des Absorbers möglichst übersichtliche Verhältnisse vorliegen, wurden hierzu die $^P\text{P}(11)$ - und $^P\text{Q}(11)$ - Linie der γ - Bande des O_2 (b-X) - Systems ausgewählt. Diese Linien sind aufgrund ihres äußerst geringen Absorptions - Koeffizienten mit Sicherheit sättigungsfrei. Die Messungen wurden mit drei verschiedenen Pumpimpulsdauern t_{chop} durchgeführt. Auf diese Weise wurde für die sich einstellende Modenlebensdauer eine obere Grenze definiert.

Abbildung (5.1) zeigt für $t_{\text{chop}} = 175 \mu\text{sec}$ die vermessenen Absorptionsdips von $^P\text{Q}(11)$ - und $^P\text{P}(11)$ - Linie zu verschiedenen spektralen Leistungsdichten.

Falls eine Verringerung der spektralen Leistungsdichte tatsächlich die Lebensdauer der Moden und damit die Empfindlichkeit S erhöht, so ist folgendes Verhalten zu erwarten: Bei abnehmender spektraler Leistungsdichte sollte die Emp-

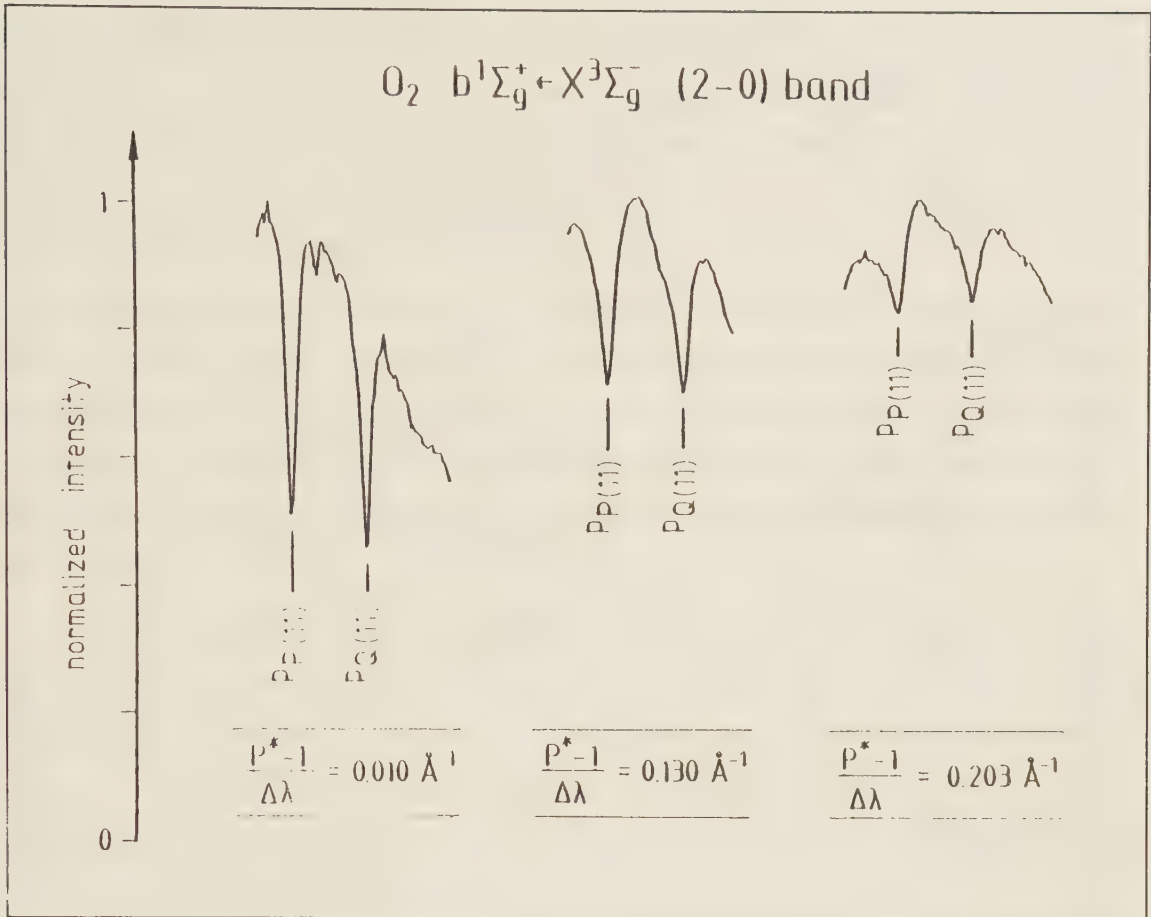


Abbildung 5.1: Ungesättigte Absorptionslinien von atmosphärischem molekularem Sauerstoff bei drei verschiedenen spektralen Leistungsdichten. Die Intensität ist auf die maximale Intensität des Lasers normiert. Die Tiefe der Absorptionslinien nimmt mit wachsender spektraler Leistungsdichte $(P^* - 1)/\Delta\lambda$ ab.

findlichkeit S bis zu einem Grenzwert wachsen, der durch t_{chop} festgelegt ist. Von dort an müßte S bei weiterer Verringerung der spektralen Leistungsdichte konstant bleiben.

Da nach Abschnitt 4.3 im ungesättigten Fall die Linien - Absorptions - Koeffizienten berechnet werden können, läßt sich die Modenlebensdauer zu den einzelnen spektralen Leistungsdichten aus den gemessenen relativen Diptiefen nach dem Beerschen Gesetz (2.12) bestimmen. Die so erhaltenen Modenlebensdauern $t_{mode} = \frac{-\ln(I/I_0)}{\kappa c}$ sind in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte $(P^* - 1)/\Delta\lambda$ in Abbildung (5.2) dargestellt. Die Kurven verlaufen exakt so, wie es gemäß obiger Überlegung zu erwarten ist.

Bei allen drei verschiedenen Pumpimpulsdauern erreichen die aus der Messung

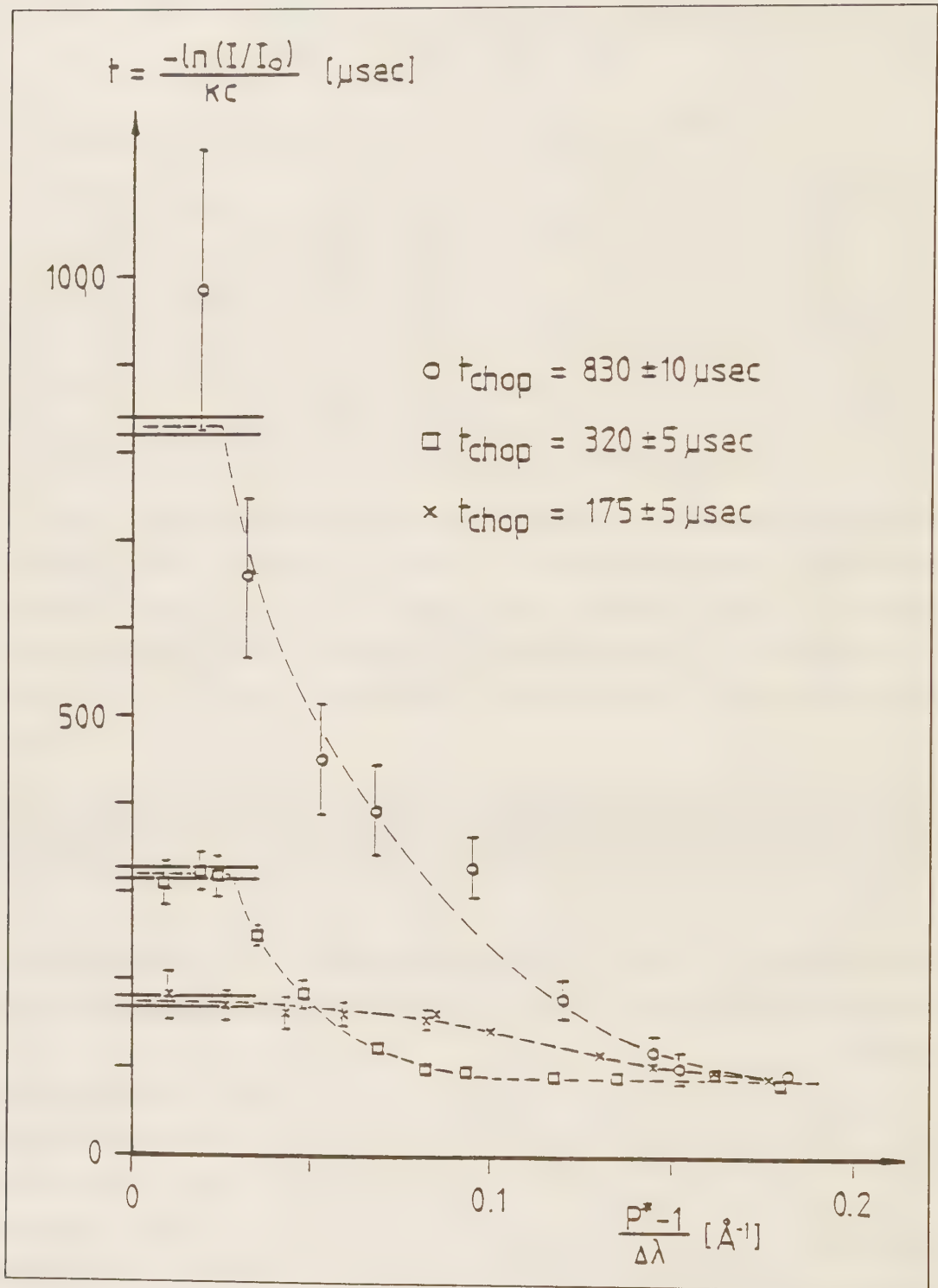


Abbildung 5.2: Nach dem Beerschen Gesetz (2.12) ermittelte Modenlebensdauern $t_{\text{mode}} = -\ln(I/I_0)/\kappa c$ als Funktion der spektralen Leistungsdichte. Die Messungen wurden für ungesättigte Absorption bei drei verschiedenen Pumpimpulsdauern t_{chop} durchgeführt. Bei kleinen spektralen Leistungsdichten geht $t_{\text{mode}} \rightarrow t_{\text{chop}}$. Zur besseren Orientierung sind die zusammengehörigen Meßpunkte durch eine gestrichelte Linie verbunden.

erhaltenen Modenlebensdauern mit ihren statistischen Fehlern bei genügend kleinen spektralen Leistungsdichten die jeweilige Chopperzeitkonstante. Dies zeigt eindeutig, daß die Modenlebensdauer in der Tat mit abnehmender spektraler Leistungsdichte wächst. Zugleich ist dieses Resultat eine hervorragende Bestätigung für die Gültigkeit des Beerschen Gesetzes (2.12).

Es fällt auf, daß die Kurve zu $t_{chop} = 320 \mu\text{sec}$ sich in ihrem Verlauf im Detail von den beiden anderen unterscheidet. Die Modenlebensdauern nehmen erst bei recht kleiner spektraler Leistungsdichte stark zu. Die entsprechenden Messungen wurden nach einer erforderlichen grundlegenden Neujustierung des gesamten Lasersystems durchgeführt. Die prinzipielle Art der Abhängigkeit ist jedoch davon nicht berührt.

Wie in Abschnitt 4.3 bereits angedeutet, wurde zur Kontrolle bei $t_{chop} = 175 \mu\text{sec}$ das Verhältnis des Linien - Absorptions - Koeffizienten der $^P\text{Q}(11)$ - Linie zu demjenigen der $^P\text{P}(11)$ - Linie bei verschiedenen spektralen Leistungsdichten bestimmt. Die Absorptions - Koeffizienten wurden aus den jeweiligen relativen Diptiefen ermittelt. Es ergab sich ein Wert von 0.892 ± 0.013 aus je 35 gemessenen Diptiefen pro Linie. Gemäß Abschnitt 4.2 liefert die Theorie nach Schlapp 1932 einen Wert von 0.904, während man nach Watson 1968 mit einer modifizierten Berechnung der Hönl - London - Faktoren 0.899 erhält (siehe Gleichung (4.3)). Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem experimentellen Ergebnis überein.

Die gemessene Abhängigkeit der Modenlebensdauer von der spektralen Leistungsdichte führt (im sättigungsfreien Fall) zu einer "Schwellenbedingung" für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption bezüglich der spektralen Leistungsdichte (vgl. z.B. Antonov et al. 1983). Die Frage nach der Ursache dieser Abhängigkeit wurde in zahlreichen Arbeiten aufgeworfen, doch bisher nie zufriedenstellend beantwortet. Die oft für Erklärungsversuche in Anspruch genommenen räumlichen Gain - Inhomogenitäten können ausgeschlossen werden, da die oben beschriebene Abhängigkeit genauso in einem Ring - Laser beobachtet wurde (Kachanov und Plakhotnik 1983). Da im Resonator eines Ring - Lasers keine stehenden, sondern umlaufende Wellen das Strahlungsfeld aufbauen, bilden sich hier keine "spatial hole burning" - Effekte im Gain - Medium aus.

Die hier erstmals vorgeschlagene Deutung der Schwellenbedingung im Fall un-

gesättigter Absorber beruht auf Intensitätsfluktuationen in den einzelnen Moden von Multimode - Lasersystemen. Die theoretische Formulierung des zugrundeliegenden Modells wurde in Abschnitt 2.3 dargestellt. Als Resultat ergab sich dort, daß die Amplituden der Intensitätsfluktuationen groß genug sind, um einzelne Lasermode auslöschen zu können.

In Abschnitt 2.3 wurde gleichfalls gezeigt, daß die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Prozeß mit zunehmender spektraler Leistungsdichte steigt. Im zeitlichen Mittel äußert sich dies in einer Verringerung der durchschnittlichen Modenlebensdauer. Dies entspricht dem experimentellen Befund.

Die auf diese Weise verursachte Abnahme der Modenlebensdauer mit zunehmender spektraler Leistungsdichte in Multimode - Lasersystemen ist von *grundsätzlicher* Natur. Die daraus folgende Schwellenbedingung für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption läßt sich daher nicht durch technische Maßnahmen umgehen. Demgegenüber stehen Begrenzungen der Modenlebensdauer, die auf mechanische Instabilitäten des Resonators, Inhomogenitäten im Farbstoff - Jet oder Verunreinigungen der Luft im Resonator beruhen. Sind ausgeprägte derartige Störungen vorhanden, so kann die Modenlebensdauer kürzer werden, als sie durch die quantenstatistisch bedingten Intensitätsfluktuationen definiert ist.

5.2 Quantitative Bestimmung der Modenlebensdauer

Einer der wesentlichen Punkte des ersten Teils dieser Arbeit ist die Bedeutung der Modenlebensdauer für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption in cw - Multimode - Lasersystemen. Um die Modenlebensdauer experimentell in den Griff zu bekommen, wurde die Pumplaserstrahlung rechteckförmig periodisch moduliert. Die Dauer der Pumpimpulse ist dann gleich der maximal möglichen Lebensdauer der Moden im Farbstofflaser. Bereits im vorangegangenen Abschnitt zeigte sich, daß die Modenlebensdauer für die Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ verantwortlich ist.

Die Abhängigkeit der Empfindlichkeit S von der Dauer der Pumpimpulse t_{chop} wurde zu drei verschiedenen Pumpparametern $P^* = P/P_{thr}$ gemessen. P^* gibt das

Verhältnis von Pumpleistung P zu Schwellenpumpleistung P_{thr} an. Die Messungen wurden auch hier anhand der sättigungsfreien $^P\text{P}(11)$ - Linie der γ - Bande des O_2 (b-X) - Systems durchgeführt.

In Abbildung (5.3) sind die gemessenen Werte mit ihren statistischen Fehlern aufgetragen. Alle drei Kurven beginnen bei kleinen Pumpimpulsdauern gemeinsam und spalten nach einigen $10 \mu\text{sec}$ auf. Der größte Pumpparameter ($P^* = 3.5$) resultiert in der geringsten Grenzempfindlichkeit. Bei einer Pumpleistung, die knapp über der Schwelle liegt ($P^* = 1.13$), steigt S selbst nach $t_{chop} = 500 \mu\text{sec}$ noch an und erreicht erst nach etwa 1.5 msec einen konstanten Wert.

Zugleich wurde beobachtet, daß sich mit zunehmender Dauer der Pumpimpulse (damit steigt auch die mittlere Modenlebensdauer) die spektrale Breite $\Delta\lambda$ des Laseremissionsprofils verringert. Dies stimmt mit der theoretischen Vorhersage nach Gleichung (2.13) überein.

Nach dem Beerschen Gesetz (2.12) läßt sich die Modenlebensdauer in einem Lasersystem bei bekanntem Absorptions - Koeffizienten berechnen, sofern man mit der relativen Diptiefe eine Meßgröße für die Empfindlichkeit hat. Auf diese Weise wurde zunächst für den Fall unmodulierter Pumpstrahlung diejenige Modenlebensdauer bestimmt, die sich als "natürliche" Modenlebensdauer t_{nat} bei der jeweiligen spektralen Leistungsdichte einstellt. Sie ist in Abbildung (5.3) zu den entsprechenden Pumpparametern angegeben und nimmt mit zunehmender spektraler Leistungsdichte ab. Dieser Zusammenhang wurde im vorangegangenen Abschnitt detailliert untersucht.

Der Verlauf der gestrichelten Kurven in Abbildung (5.3) wurde aus einem Modell errechnet, das den Unterschied zwischen tatsächlicher Modenlebensdauer t_{mode} und Pumpimpulsdauer t_{chop} berücksichtigt. Dieses Modell beruht darauf, daß das in Abschnitt 4.2 beschriebene Meßverfahren einen statistischen Mittelungsprozeß einschließt. Demnach ist die durchschnittliche Modenlebensdauer diejenige Zeitdauer, die sich im Mittel ergibt, wenn man das gesamte System aller Moden über einen längeren Zeitraum betrachtet. Da die Modenlebensdauer t_{mode} einer Exponentialverteilung folgt, nimmt ihre Wahrscheinlichkeitsdichte mit zunehmender Zeitdauer exponentiell ab:

$$P(t) = \lambda \exp(-\lambda t) \quad (5.1)$$

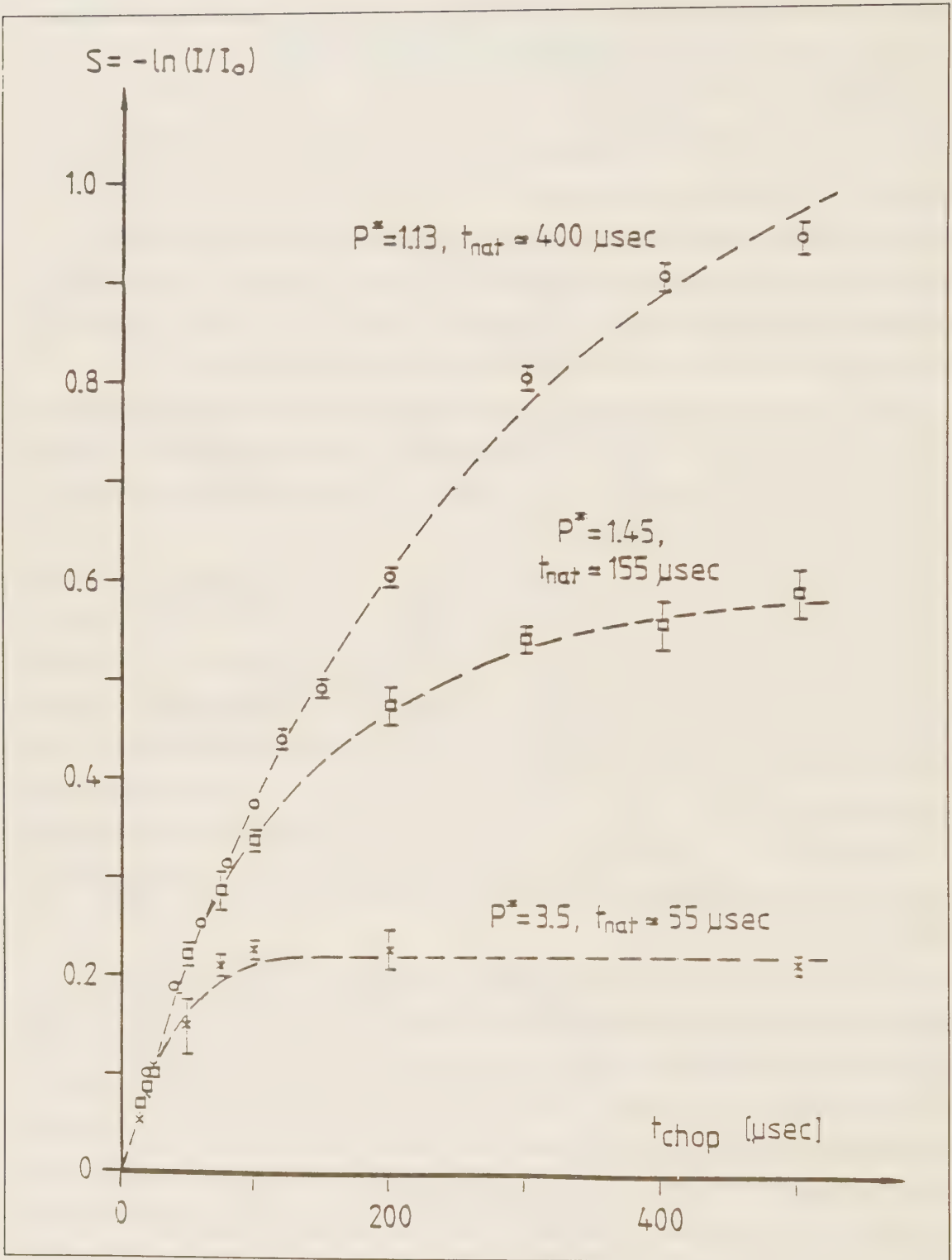


Abbildung 5.3: Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ als Funktion der Pumpimpulsdauer t_{chop} im Fall ungesättigter Absorption. Die verschiedenen Pumpparameter P^* führen zu verschiedenen natürlichen Modenlebensdauern t_{nat} . Die gestrichelten Kurven wurden nach einem Modell erhalten, mit dessen Hilfe die mittlere Modenlebensdauer t_{mode} aus der Pumpimpulsdauer t_{chop} berechnet werden kann.

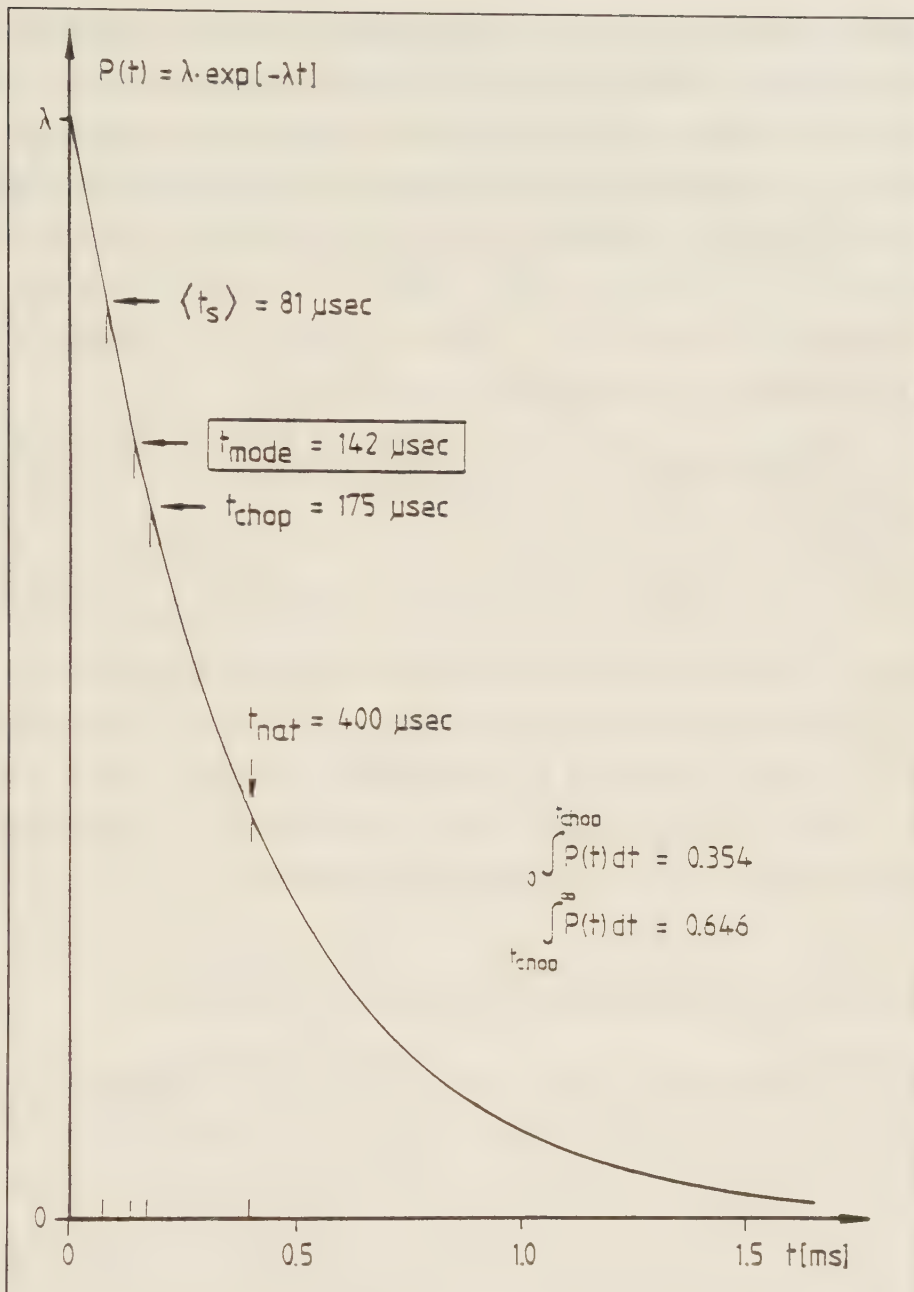


Abbildung 5.4: Exponentielle Wahrscheinlichkeitsverteilung der Modenlebensdauern. Um das im Text erläuterte Modell zu illustrieren, sind die relevanten Werte für $t_{\text{chop}} = 175 \mu\text{sec}$ und $t_{\text{nat}} = 400 \mu\text{sec}$ eingezeichnet. In diesem Fall ergibt sich eine Modenlebensdauer $t_{\text{mode}} = 142 \mu\text{sec}$.

Mit $\lambda^{-1} = \langle t_{\text{nat}} \rangle$ erzeugt man also eine Wahrscheinlichkeitsdichte, die die Einzelbeiträge zu einer Mode so beschreibt, daß sich summiert über alle Einzelbeiträge eine durchschnittliche Modenlebensdauer t_{nat} ergibt. Wie oben beschrieben wurde, ist t_{nat} durch die Messung zugänglich.

Mit Hilfe einer *begrenzten* Pumpimpulsdauer t_{chop} schneidet man alle Modenlebensdauern ab, die größer sind als t_{chop} . Der Mittelwert derjenigen Modenlebensdauern t_s , die selbst im freilaufenden Laser kürzer als t_{chop} wären, ist $\langle t_s \rangle$. Die insgesamt resultierende durchschnittliche Modenlebensdauer erhält man durch Bildung eines gewichteten Mittelwertes aus $\langle t_s \rangle$ und t_{chop} . Gewichtungsfaktoren sind die Integrale $\int_0^{t_{chop}} P(t)dt$ bzw. $\int_{t_{chop}}^{\infty} P(t)dt$. Abbildung (5.4) veranschaulicht diese Überlegungen für den Fall $t_{nat} = 400 \mu\text{sec}$ und $t_{chop} = 175 \mu\text{sec}$. Es ergibt sich eine resultierende Modenlebensdauer von $142 \mu\text{sec}$.

Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, hängt die natürliche Modenlebensdauer von der spektralen Leistungsdichte $(P^*-1)/\Delta\lambda$ ab. Darüber hinaus ist $\Delta\lambda$ gemäß Gleichung (2.13) proportional zu $t^{-1/2}$. Die resultierende Modenlebensdauer ist in diesem Sinne für jede Pumpimpulsdauer t_{chop} zu korrigieren.

Aus dieser tatsächlichen Modenlebensdauer läßt sich umgekehrt wie bei der Berechnung der natürlichen Modenlebensdauer im freilaufenden Lasersystem über das Beersche Gesetz (2.12) eine Empfindlichkeit S folgern. Die so erhaltenen Werte für S sind als gestrichelte Kurve in Abbildung (5.3) eingezeichnet. Die Meßergebnisse werden hierdurch exzellent wiedergegeben.

5.3 Absolutbestimmung kleiner Absorptionskoeffizienten

In den vorangegangenen Abschnitten wurde mehrfach angedeutet, daß das Verfahren der resonatorinternen Absorption eine Absolutbestimmung von kleinen Absorptions - Koeffizienten ermöglicht. Die Absorption ist dann ungesättigt und κ ist nicht zeitabhängig. Bei bekannter Teilchendichte (bzw. Linien - Oszillatorenstärke) bedeutet dies eine absolute Messung sehr kleiner Linien - Oszillatorenstärken (bzw. Teilchendichten).

Diese Möglichkeit beruht darauf, daß durch das Beersche Gesetz (2.12) eine geeignete Meßvorschrift existiert. Es muß jedoch darauf geachtet werden, daß alle im Beerschen Gesetz auftretenden Parameter klar definiert sind. Ganz entscheidend gilt dies für die Modenlebensdauer t_{mode} .

Mit der in Abschnitt 5.2 beschriebenen Methode kann man die Modenlebensdauer t_{mode} aus einer direkt meßbaren Größe, nämlich t_{chop} , bestimmen. Dieses

Verfahren wird stark vereinfacht, wenn $t_{chop} \ll t_{nat}$ ist. In diesem Fall ist t_{mode} genügend gut durch t_{chop} angenähert, so daß im Beerschen Gesetz t_{chop} anstelle von t_{mode} verwendet werden kann. Die Empfindlichkeit ist dann linear von t_{chop} abhängig, wie man bereits aus Abbildung (5.3) entnehmen kann.

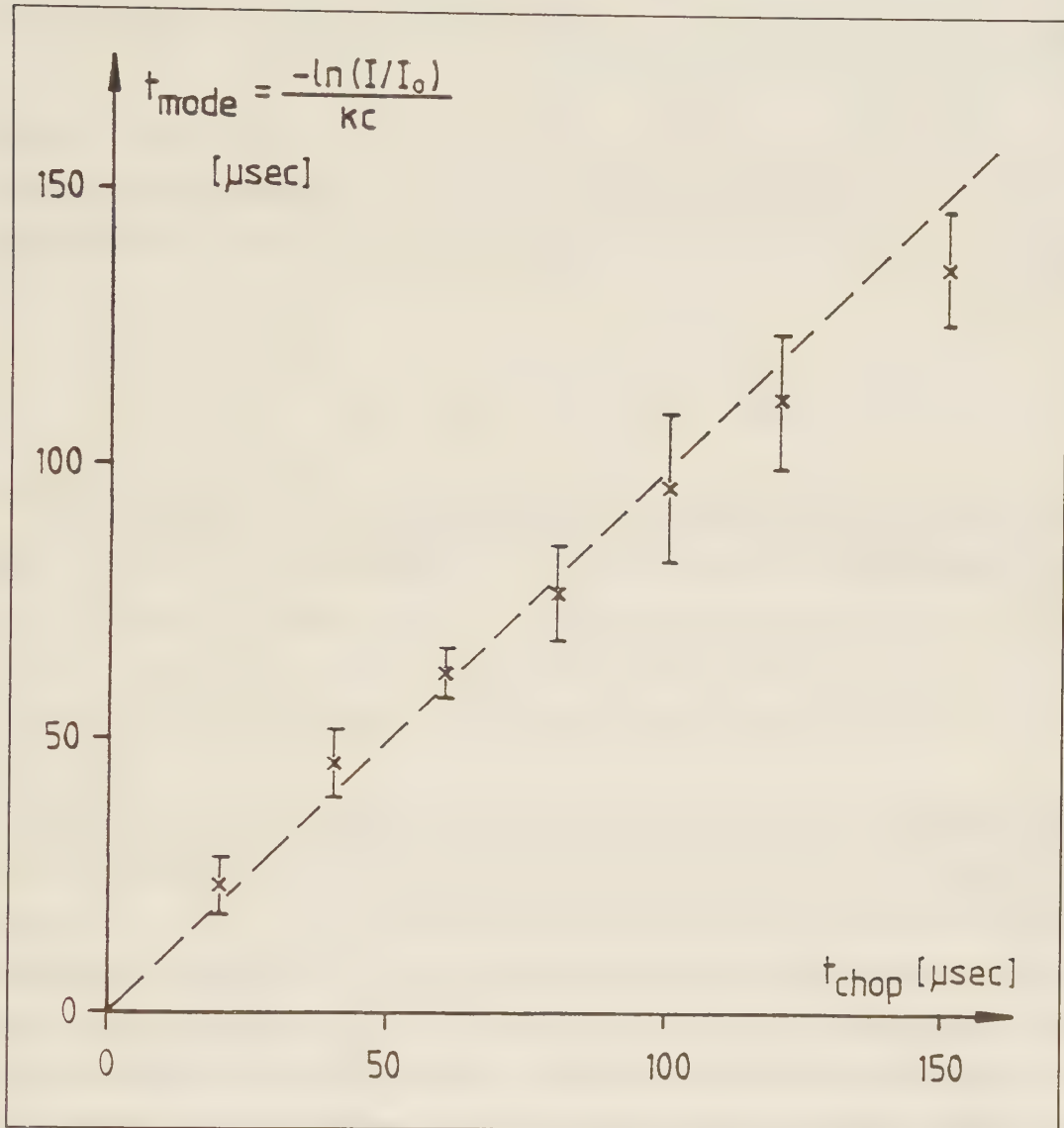


Abbildung 5.5: Nach dem Beerschen Gesetz (2.12) ermittelte Modenlebensdauern t_{mode} als Funktion der Pumpimpulsdauer $t_{chop} \ll t_{nat}$ für ungesättigte Absorption. Es ergibt sich eine lineare Abhängigkeit mit $t_{mode} \simeq t_{chop}$. Dieses Resultat ermöglicht die Absolutbestimmung kleiner Absorptionskoeffizienten aus t_{chop} und (I/I_0) .

Zur Illustration dieser Linearität zeigt Abbildung (5.5) die tatsächliche Modenlebensdauer $t_{mode} = \frac{-\ln I/I_0}{\kappa c}$ als Funktion von t_{chop} . κ wurde nach Abschnitt

4.3 ermittelt. Der zugehörige Pumpparameter ist $P^* = 1.13$; die natürliche Modenlebensdauer ist größer als $400 \mu\text{sec}$.

Die gemessenen Werte sollten auf der Winkelhalbierenden liegen, solange die tatsächliche Modenlebensdauer und die Pumpimpulsdauer im Rahmen der Meßgenauigkeit übereinstimmen. Dies ist der Fall bis zu $t_{chop} = 120 \mu\text{sec}$. Der erste abweichende Wert liegt bei $150 \mu\text{sec}$.

Berechnet man aus den Meßwerten bis $120 \mu\text{sec}$ den Absorptions - Koeffizienten aus den gemessenen relativen Diptiefen und den zugehörigen Modenlebensdauern nach dem Beerschen Gesetz (2.12), so erhält man für die Linienmitte einen Wert von

$$\kappa_{exp} = (1.36 \pm 0.14) \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1} .$$

Setzt man in Gleichung (4.2) aus Abschnitt 4.3 die experimentell ermittelte Absorptions - Linienbreite ein, so ergibt sich aus der Theorie ein Absorptions - Koeffizient:

$$\kappa_{calc} = (1.24 \pm 0.13) \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$$

Der angegebene Fehler für diesen Wert stammt aus dem Fehler der Absorptions - Linienbreite $\Delta\nu = (0.285 \pm 0.029) \text{ cm}^{-1}$. Im Rahmen der experimentellen Fehler stimmen die beiden Ergebnisse hervorragend überein.

Wie bereits erwähnt, ist die Bedingung $t_{chop} \ll t_{nat}$ und damit die Linearität von S als Funktion von t_{chop} zur Bestimmung von t_{mode} nicht notwendig. Im Hinblick auf die Messung kleiner Absorptions - Koeffizienten kann das in Abschnitt 5.2 beschriebene Verfahren immer angewandt werden, solange die Pumpimpulsdauer kleiner als die natürliche Modenlebensdauer ist.

5.4 Empfindlichkeit und Sättigung der Absorption

Daß Sättigungsprozesse bei resonatorinterner Absorption auftreten können, erwähnte bereits Maeda 1977. Mironenko und Pack zeigten 1978, daß die Tiefe der Absorptionsdips, die von den beiden Na D - Linien verursacht werden, bei steigender spektraler Leistungsdichte drastisch abnimmt. Dagegen werden die in der unmittelbaren Nachbarschaft liegenden H_2O - Linien nur wenig schwächer. (Das Verhalten der H_2O - Linien befindet sich damit in qualitativer Übereinstimmung mit dem in Abschnitt 5.1 gezeigten Resultat. Da mit zunehmender spektraler Leistungsdichte die Modenlebensdauer kleiner wird, sollten auch die Wasserdampf - Linien etwas schwächer werden, auch wenn sie sicherlich nicht gesättigt werden können.) Die abnehmende relative Diptiefe der Na D - Linien bei steigender spektraler Leistungsdichte wurde von Mironenko und Pack auf das Sättigungsverhalten der Absorption zurückgeführt.

Die numerischen Ergebnisse aus Abschnitt 3.2 zeigten, daß sich bereits bei Oszillatorenstärken der Größenordnung 10^{-4} beobachtbare Sättigungsphänomene im Absorber einstellen können, sofern die Teilchendichte nicht zu groß ist. Aus diesem Grunde wurde das Absorptions - Sättigungsverhalten am I_2 ($\text{B}^3\Pi_u^+ - \text{X}^1\Sigma_g^+$) - System studiert. Im einzelnen wurden die in Abschnitt 4.4 aufgeführten Übergänge untersucht.

Abbildung (5.6) zeigt drei I_2 - Spektren im relevanten Wellenlängenbereich für drei verschiedene Pumpimpulsdauern t_{chop} . Alle drei Scans sind auf die gleiche Maximalintensität normiert. Bei relativ kurzen Pumpimpulsdauern sind deutliche Absorptionsstrukturen erkennbar, die ohne Schwierigkeit nach Gerstenkorn und Luc 1978 identifizierbar sind. Bei großem t_{chop} macht sich drastisch der Effekt bemerkbar, daß sich die gesamte Laserleistung auf einige "Linien" konzentriert ("spectral narrowing"). Diese Linien entstehen bei den Wellenlängen, bei denen keine I_2 - Absorption stattfindet. In einem solchen Fall ist natürlich eine Messung von relativen Diptiefen nicht möglich. Im Bereich einiger zehn μsec ist dies jedoch kein Problem.

Zum Nachweis der Absorptions - Sättigung wurden die in den vorangegangenen Abschnitten erzielten Ergebnisse in folgender Weise benützt: Für ungesättigte Absorption wurde in Abschnitt 5.3 demonstriert, daß eine lineare Abhängigkeit

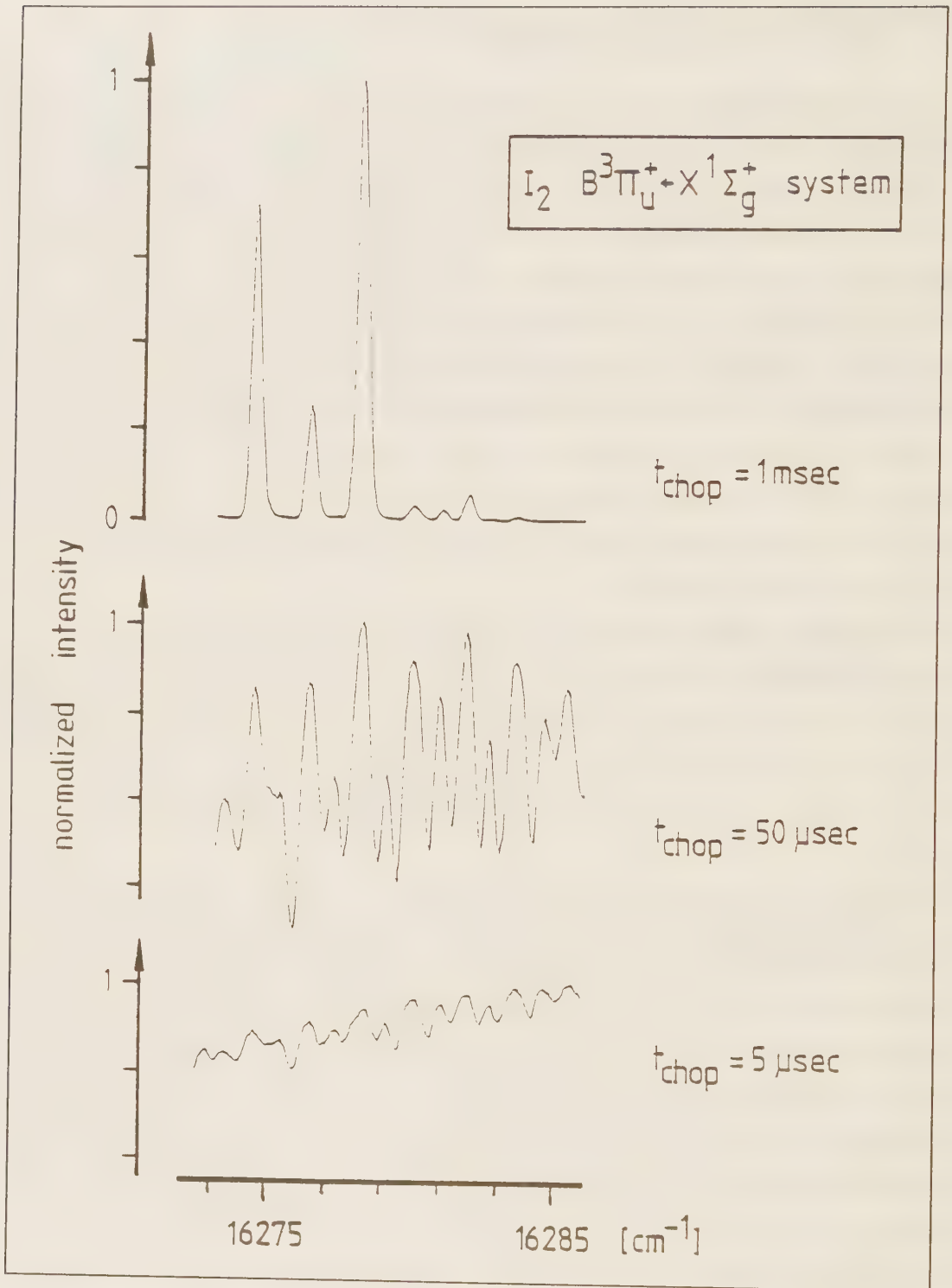


Abbildung 5.6: Laseremissionsspektrum im Fall gesättigter resonatorinterner Absorption am Beispiel von molekularem Iod im Wellenlängenbereich um 614 nm. Die gemessene Intensität ist für alle drei Pumpimpulsdauern t_{chop} auf die maximale Intensität normiert. Bei langen Pumpimpulsdauern beschränkt sich die Laseremission auf diejenigen Wellenlängen, bei denen keine Absorption stattfindet.

zwischen Pumpimpulsdauer t_{chop} und Empfindlichkeit S besteht, solange t_{chop} klein gegenüber der natürlichen Modenlebensdauer t_{nat} ist. Der lineare Zusammenhang geht erst dann verloren, wenn die tatsächliche Modenlebensdauer t_{mode} nicht mehr genügend gut durch t_{chop} angenähert wird. Im Grenzfall sehr langer Pumpimpulsdauern ist die tatsächliche Modenlebensdauer unabhängig von t_{chop} und geht asymptotisch gegen t_{nat} . Falls im Absorber Sättigung auftritt, so sollte sich dagegen bereits bei kleinen Pumpimpulsdauern ein deutlich nichtlinearer Zusammenhang zwischen Empfindlichkeit S und t_{chop} herausstellen. Darüber hinaus sollte eine Erhöhung der spektralen Leistungsdichte bewirken, daß die relative Tiefe des Absorptionsdips zurückgeht.

Abbildung (5.7) zeigt die gemessene Abhängigkeit der Empfindlichkeit S von der Pumpimpulsdauer $t_{chop} \leq 50 \mu\text{sec}$ für zwei verschiedene Pumpleistungen. Die Teilchendichte wurde bei der Messung der relativen Diptiefen nicht verändert. Die Pumpleistungen wurden genügend klein gewählt, um eine natürliche Modenlebensdauer $t_{nat} \geq 300 \mu\text{sec}$ zu gewährleisten. Es ist deutlich zu erkennen, daß die Empfindlichkeit S *nicht* linear von $t_{mode} \simeq t_{chop}$ abhängt. Das Beersche Gesetz ist in der Form $-\ln(I/I_0) = \kappa c t l / L$ nicht mehr gültig. Hierfür kommt lediglich *eine* Erklärung in Frage: κ ist nicht konstant, sondern hängt vielmehr von der Entwicklungszeit des Systems ab. Dieser Fall tritt genau dann ein (vgl. Abschnitt 3.2), wenn die Absorptions - Oszillatorenstärke groß genug ist, um eine merkliche Besetzungsdichte im oberen an der Absorption beteiligten Niveau zu erzeugen. Dann ist die *Besetzungsdichte - Differenz* Δn zwischen unterem und oberem Niveau für den Absorptions - Koeffizienten entscheidend. Wie in Abschnitt 3.2 gezeigt wurde, liefert das dynamische Verhalten der gekoppelten Ratengleichungen in diesem Fall eine Zeitabhängigkeit des Absorptions - Koeffizienten.

Damit ist das experimentelle Ergebnis eindeutig durch eine Sättigung der Absorption erklärbar. Ebenso ist auf Grund dieser Sättigung sofort zu verstehen, daß die kleinere der beiden Pumpleistungen zu einer größeren relativen Diptiefe und damit zu größerem S führt. Auch dies geht aus Abbildung (5.7) klar hervor.

Zudem zeigt das Experiment am I_2 - Molekül, daß auch in molekularen Absorbersystemen, die als Viel - Niveau - Systeme zu betrachten sind, bei relativ geringen Absorptions - Oszillatorenstärken ein deutliches Sättigungsverhalten auftreten

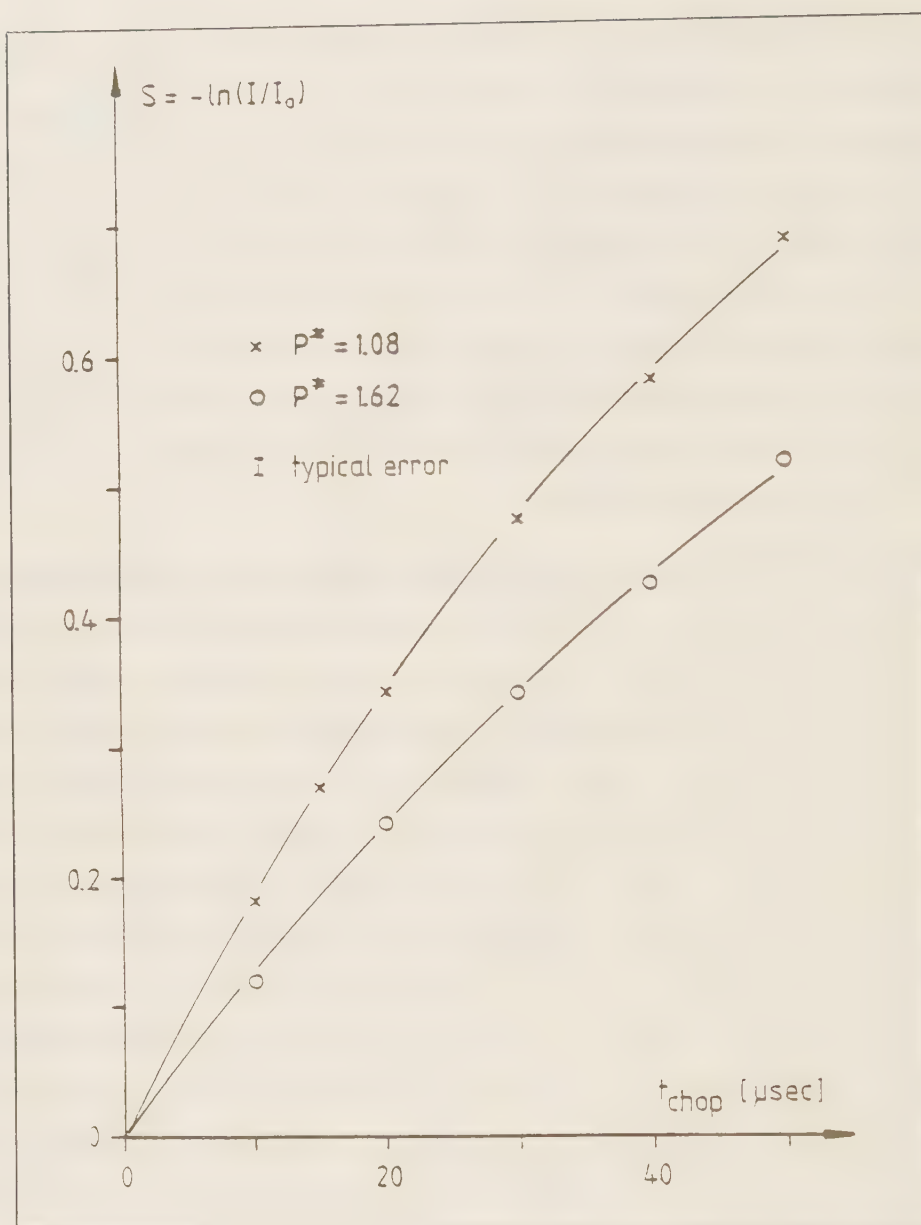


Abbildung 5.7: Empfindlichkeit $S = -\ln(I/I_0)$ als Funktion der Pumpimpulsdauer $t_{chop} \ll t_{nat}$ im Fall gesättigter Absorption. Für beide Pumpparameter P^* zeigt S eine deutlich nichtlineare Abhängigkeit von t_{chop} .

kann.

Auf Grund des Sättigungsverhaltens im Absorber existiert ein zweiter Typ von Schwellenbedingung für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption hinsichtlich der spektralen Leistungsdichte. Diese Schwellenbedingung greift bei genügend großen Absorptions - Oszillatorenstärken bzw. geringen Teilchendichten und steht in engem Zusammenhang mit der Zeitabhängigkeit des Absorptions -

Koeffizienten. Man kann für den gesättigten Fall ein modifiziertes Beersches Gesetz der Form

$$I = I_0 \exp(-\kappa(t)ctl/L) \quad (5.2)$$

angeben. Die Zeitabhängigkeit in $\kappa(t)$ rührt dabei von der zeitlichen Änderung der Besetzungsdichte - Differenz Δn zwischen den Absorberniveaus her.

Mit Hilfe dieses Ergebnisses lassen sich auch Beobachtungen von Morgan *et al.* 1978 zwanglos erklären, deren bisherige Interpretation fragwürdig war. Morgan *et al.* untersuchten resonatorinterne Absorption von I_2 in einem gepulsten Lasersystem (Pulsdauer: einige μsec). Sie beobachteten sowohl bei größeren Absorptions - Koeffizienten als auch bei zunehmender Laserleistung eine Abnahme der Empfindlichkeit. Als Erklärung hierfür wurden räumliche Inhomogenitäten im Gain - Medium angeführt. Wie in Abschnitt 2.2 erläutert wurde, ist der Einfluß solcher räumlicher Effekte unter den genannten Bedingungen vernachlässigbar. Hingegen können die Beobachtungen von Morgan *et al.* als Effekte der Absorptions - Sättigung verstanden werden.

Ziemlich undurchsichtig ist dagegen der Sachverhalt in einem Experiment von Schröder *et al.* 1975. Dort wurde ein gepulstes System mit Pulsdauern von ca. 300 nsec und extrem hoher Pumprate mit I_2 als Absorber verwendet. Bereits nach 100 nsec wird eine obere Grenze der Empfindlichkeit erreicht. Der Blitzlampen - Pumpimpuls wird nach 200 nsec mit 10^{31} Photonen/ sec^2cm^3 maximal. (Gewöhnlich verwendete Blitzlampen produzieren ein Maximum von ca. 10^{30} Photonen/ sec^2cm^3 nach einigen μsec (Keller *et al.* 1972)).

Für eine genaue Analyse dieses Experimentes wäre die Kenntnis des zeitlichen Blitzlampen - Impulsverlaufes erforderlich. Denkbar wäre folgende Interpretation: Zu Beginn des Pumpimpulses steigt die Empfindlichkeit S nach Gleichung (5.2) mit zunehmender Zeit an, wie es die vom Beginn des Laserimpulses an einsetzende Sättigung der Absorption bewirkt. Wenn die Pumprate genügend groß wird, kann das im Resonator entstehende Strahlungsfeld die Verstärkung im Gain - Medium sättigen. Folglich wird das Strahlungsfeld in den Moden, die nicht von der Absorption betroffen sind, nicht weiter verstärkt. Die von der Absorption betroffene(n) Mode(n) jedoch kann pro Gaindurchgang teilweise oder ganz "aufgefüllt" werden.

Das heißt mit anderen Worten, daß zwischen den Moden keine Umverteilung der Intensität mehr stattfindet: diejenigen Moden, die die Intensitätsverluste der absorbierten Mode(n) über einen ungesättigten Gain aufnehmen können, sind im Fall gesättigten Gains nicht weiter verstärkbar. Sobald es dazu kommt, wird sich die relative Diptiefe nicht mehr ändern, da bei jedem Durchgang durch das Gain - Medium die gleichen Anfangsbedingungen für den anschließenden Absorptionsprozeß geschaffen werden.

Auf diese Weise erscheint es möglich, einen Gleichgewichtszustand im Lasersystem zu erreichen, der sich bereits nach sehr kurzer Zeit einstellt. Er beruht auf der Sättigung des verstärkenden (Gain -) Mediums und stellt damit einen extremen Grenzfall dar.

6. Die wesentlichen Mechanismen der Empfindlichkeit resonatorinterner Absorption

In den vorangegangenen Abschnitten 2 bis 5 wurde ein umfassendes konsistentes Modell konzipiert und experimentell verifiziert, das die für die resonatorinterne Absorption wesentlichen Parameter in der richtigen Weise verknüpft. Alle wichtigen Zusammenhänge werden im folgenden Abschnitt noch einmal zusammengefaßt und sind in Abbildung (6.1) illustriert.

Die bisher existierende Konfusion in der Literatur zur resonatorinternen Absorption hat vor allem zwei Ursachen:

1. Es wurden theoretische Modelle formuliert, die von konträren Voraussetzungen ausgehen. Man kann generell zwischen einer *zeitabhängigen Theorie* (Baev et al. 1978) und "*steady state*" - Theorien (Haensch et al. 1972 und andere) unterscheiden.
2. Hinsichtlich der Verhältnisse im Absorber wurde meist nicht berücksichtigt, daß deutlich meßbare Sättigungsprozesse auftreten können. Dies führt zu Nichtlinearitäten im Verhalten des Lasersystems, die meist weder in theoretische Überlegungen (Formulierung des Ratengleichungssystems) noch in die Interpretation der experimentellen Ergebnisse (Schwellenbedingung) einbezogen wurden.

Bezüglich des ersten Punktes konnte eindeutig gezeigt werden, daß die Annahme eines Gleichgewichtszustandes für cw - Multimode - Lasersysteme mit schmalbandigen resonatorinternen Absorbern im Regelfall (Ausnahmen siehe unten) nicht aufrecht zu erhalten ist. Neben mechanischen Instabilitäten und anderen äußeren Einflüssen ist die ungestörte Entwicklungszeit des Systems prinzipiell durch system - immanente, quantenstatistisch bedingte Intensitätsfluktuationen begrenzt. Man kann cw - Multimode - Lasersysteme als spektral inkohärent gepulste Systeme betrachten. Aus diesem Grund muß der Schwerpunkt bei der Behandlung solcher Systeme auf der zeitlichen Dynamik liegen. Damit gewinnt der Begriff der Lebensdauer einzelner Lasermode eine entscheidende Bedeutung für die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption.

Wie in Abbildung (6.1) schematisch dargestellt ist, gilt für die resonatorin-

terne Absorption eine modifizierte Form des Beerschen Gesetzes. Danach ist die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption im ungesättigten Fall direkt proportional zur Modenlebensdauer und zum Absorptions - Koeffizienten. Die Modenlebensdauer ihrerseits hängt auf Grund von quantenstatistisch bedingten Intensitätsfluktuationen direkt von der spektralen Leistungsdichte im Resonator ab. Dies äußert sich in einer Schwellenbedingung, die unabhängig von Sättigungsprozessen im Absorber ist.

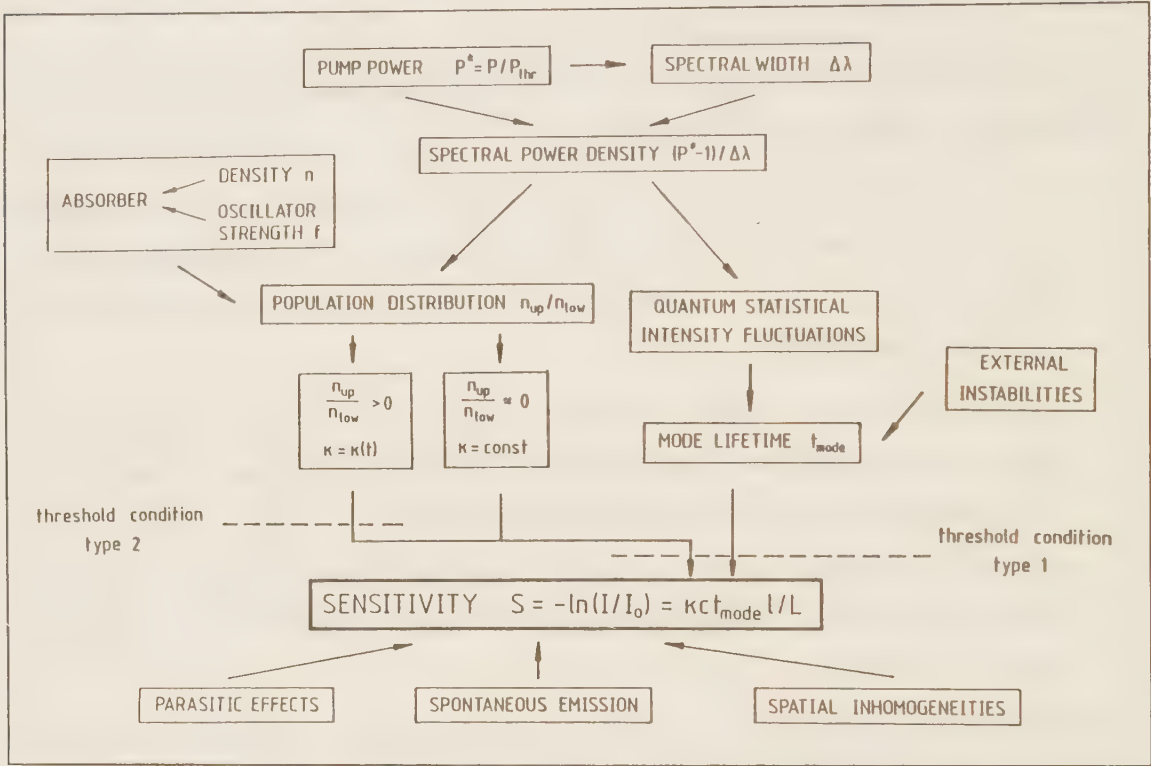


Abbildung 6.1: Überblick über die verschiedenen Prozesse, die die Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption bestimmen.

Die prinzipielle Grenze der Empfindlichkeit der resonatorinternen Absorption ist durch den Beitrag der spontanen Emission in jeder Mode bestimmt (Belikova et al. 1972). Nur, wenn das Gain - Volumen nicht mehr vernachlässigbar im Vergleich zum Resonatorvolumen ist, können Inhomogenitäten im Gain - Medium diese Grenzempfindlichkeit verschieben. Darüber hinaus kann die Empfindlichkeit gegenüber frequenzselektiven Verlusten durch sogenannte "parasitäre" Effekte stark beeinträchtigt werden (Antonov et al. 1982). Unter diesem Sammelbegriff sind Effekte zu verstehen, die ihrerseits unerwünschte frequenzselektive Verluste

erzeugen. Hierzu zählen z.B. Etalon - Effekte oder Abbildungsfehler optischer Komponenten.

Im Rahmen des zeitabhängigen Modells nach Baev *et al.* 1978 lassen sich zwei Spezialfälle skizzieren, in denen ein "steady state" bezüglich der Photonenbilanz möglich ist.

- Im trivialen Grenzfall erreichter maximaler Empfindlichkeit bleibt in der absorbierten Mode lediglich noch ein Beitrag der spontanen Emission. Dieser Fall ist in der Praxis umso unwahrscheinlicher, je kleiner der Absorptions - Koeffizient ist. Bei sehr kleinen Absorptions - Koeffizienten wird vor dem Eintreten eines solchen Gleichgewichtszustandes die begrenzte Modenlebensdauer die Entwicklung des Systems abbrechen (vgl. hierzu Abbildung (3.1)).
- Wenn es gelingt, die Verstärkung des resonatorinternen Strahlungsfeldes durch das Gain - Medium zu sättigen, kann sich bereits nach sehr kurzer Zeit eine relative Diptiefe einstellen, die sich zeitlich innerhalb der Lebensdauer der absorbierten Mode nicht mehr ändert (vgl. Abschnitt 5.4).

Die Beschreibung von Sättigungsprozessen im absorbierenden Medium wurde durch ein Ratengleichungssystem erreicht, das den Absorber in einer gesonderten Bilanzgleichung berücksichtigt. Dadurch wird eine mögliche Besetzungsumverteilung zwischen den Absorberniveaus miteinbezogen. Das Verhältnis der Besetzungsdichten in den beiden Niveaus ist einerseits abhängig von der Teilchendichte des Absorbers und der Oszillatorenstärke des betrachteten Übergangs. Auf der anderen Seite wird es durch die resonatorinterne spektrale Leistungsdichte bestimmt.

Im Fall gesättigter Absorption stellt sich heraus, daß sich der Absorptions - Koeffizient mit der Differenz der Besetzungsdichten der Absorberniveaus ändert. Dies läßt sich formal durch ein Beersches Absorptionsgesetz mit zeitabhängigem Absorptions - Koeffizienten beschreiben. Da die Sättigung bei abnehmender spektraler Leistungsdichte zurückgeht, ergibt sich eine zweite Art von Schwellenbedingung (vgl. Abschnitte 3.2, 5.4). Sie greift lediglich im Fall der Sättigung des Absorbers und ist der fundamentalen Schwellenbedingung überlagert, die von starken Intensitätsfluktuationen verursacht wird.

7. Resonatorinterne Doppelresonanz

In zahlreichen Fällen ist es - insbesondere für die Molekülspektroskopie - wünschenswert, zusätzlich zur Wellenlänge und Intensität eines Übergangs auch Informationen über die beteiligten Zustände (Vibrations- und Rotationsniveaus) zu erhalten. Während die erstgenannten Parameter beispielsweise mit Hilfe der resonatorinternen Absorption zugänglich sind, bieten sich zur zustandsselektiven Spektroskopie Doppelresonanz - Verfahren an.

Dabei wird in einem ersten Schritt ein Übergang gepumpt, dessen Ausgangs- und Endzustand bekannt sind. Moduliert man die Strahlung eines Lasers A, mit dem der betreffende Übergang gepumpt wird, mit einer festen Frequenz, so wird die Besetzung der beiden beteiligten Zustände ebenfalls mit der gleichen Frequenz moduliert. Auf diese Weise erreicht man eine Markierung der beiden Zustände. Man kann dann einen zweiten Laser B über den interessierenden Wellenlängenbereich fahren und phasenempfindlich diejenigen Signale nachweisen, die aus Übergängen von oder zu einem der beiden markierten Zustände resultieren. Handelt es sich um Übergänge, die mit sehr geringer Wahrscheinlichkeit stattfinden, so ist es naheliegend, die hohe Empfindlichkeit resonatorinterner Verfahren auszunützen.

Im langwelligen Spektralbereich (IR, MW, RF) wurden resonatorinterne Doppel- und sogar Dreifachresonanzverfahren bereits mit Erfolg angewandt (siehe Abschnitt 1). Dagegen sind resonatorinterne Doppelresonanz - Experimente im sichtbaren Spektralbereich bisher noch nicht durchgeführt worden. Sie erscheinen vor allem im Hinblick auf mehratomige Moleküle interessant, deren Einfachresonanz - Spektren auf Grund verschiedenartigster Wechselwirkungen (z.B. Coriolis - Kopplung oder Fermi - Resonanz) oft sehr unregelmäßig und unübersichtlich sind. Ebenso kann die Analyse von Gasentladungsspektren (Molekülionen) wesentlich vereinfacht werden.

7.1 Experimentelle Details

Zur Demonstration der resonatorinternen Doppelresonanz im sichtbaren Spektralbereich wurde aus Gründen der einfachen experimentellen Handhabung das H_2O - Molekül ausgewählt. Wasserdampf ist in ausreichender Konzentration in der Atmosphäre vorhanden, um resonatorintern nachgewiesen werden zu können. Unter Atmosphärendruck nimmt man allerdings die Nachteile großer Linienbreite und hoher Stoßraten zwischen energetisch nahe benachbarten Zuständen in Kauf. Durch Stoßkopplung wird die Zustandselektivität des Verfahrens herabgesetzt, da sich die Markierung der beiden am gepumpten Übergang beteiligten Zustände auf andere Niveaus überträgt.

Eine Skizze des experimentellen Aufbaus zeigt Abbildung (7.1). Die Doppelresonanz wird im Resonator eines breitbandigen Farbstofflasers (Laser B) durchgeführt, wie er in Abschnitt (4.2) beschrieben wurde. Im Unterschied zu den dort angegebenen technischen Daten wurde als Farbstoff reines Rhodamin 6G verwendet. Als Markierungslaser dient ein zweiter Farbstofflaser (Laser A), der mit Hilfe eines Lyot - Filters abstimmbar ist. Die Linienbreite der emittierten Strahlung betrug etwa 0.1 cm^{-1} bei einer Ausgangsleistung von ca. 800 mW. Laser A wurde durch einen Argon - Ionenlaser bei 514.5 nm mit einer Leistung von 7 Watt gepumpt.

Der Markierungslaser A wird auf einen bekannten H_2O - Übergang (Einzelheiten siehe unten) abgestimmt, der im Resonator von Laser B gepumpt werden soll. Die Pumpstrahlung wird zwischen Laser A und B zunächst mit einem mechanischen Chopper moduliert und dann in der Nähe des "fold mirror" in den Resonator von Laser B eingefädelt, so daß die räumliche Überlappung beider Strahlen möglichst groß ist.

Der breitbandig betriebene Laser B wird mit einem Interferenzfilter auf den Wellenlängenbereich um die Pumpwellenlänge abgestimmt. Damit sollte als Doppelresonanzsignal zumindest der gepumpte Übergang selbst nachgewiesen werden können. Die emittierte Strahlung von Laser B wird (ebenso wie in Abschnitt 4.2) über einen Spektrographen photoelektrisch gemessen und mit einem Lock - In Verstärker registriert. Da bei guter räumlicher Koinzidenz beider Strahlen im Resonator von Laser B auch die moduliert Strahlung von Laser A mitausgekopp-

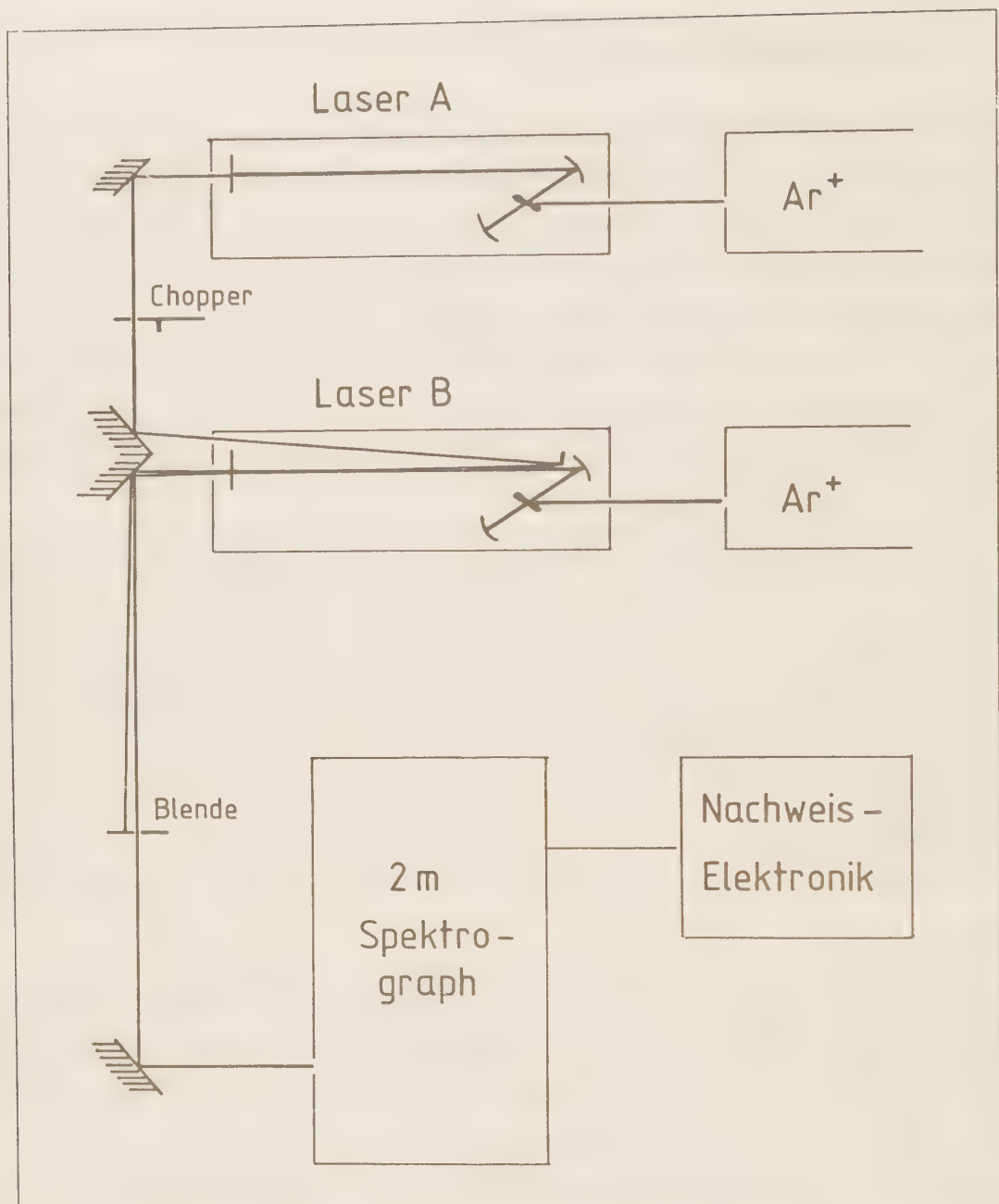


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur resonatorinternen Doppelresonanzspektroskopie. Laser A dient als Markierungslaser, die Doppelresonanz findet im breitbandig betriebenen Laser B statt.

pelt wird, befindet sich zwischen Laser B und dem Spektrographen eine Blende, die die Strahlung von Laser A abblockt. Als Referenzfrequenz für den Lock - in Verstärker wird die Modulationsfrequenz des Lasers A und damit die Frequenz der Änderung der Besetzungszahlen in den markierten Zuständen benutzt. Der Lock - in Verstärker liefert somit nur bei denjenigen Wellenlängen ein Signal, bei denen

Übergänge liegen, an denen ein markierter Zustand beteiligt ist.

Das registrierte Spektrum hat aus diesem Grund das Aussehen eines Emissionsspektrums. Seine spektrale Breite ist durch die Bandbreite von Laser B vorgegeben. Auf eine Durchstimmung der Wellenlänge konnte verzichtet werden, da diese Bandbreite bei einer Ausgangsleistung von 120 mW etwa 15 cm^{-1} betrug. Die Ausgangsleistung von Laser B wurde anhand des resultierenden Doppelresonanzsignals optimiert.

Ein für das Experiment geeigneter Wellenlängenbereich wurde danach ausgewählt, daß innerhalb der Bandbreite von Laser B mehrere Übergänge mit einem gemeinsamem Zustand liegen. Die Quantenzahlen der Zustände wurden aus der Arbeit von Antipov *et al.* 1981 entnommen. Im Wellenlängenbereich um 589.2 nm befinden sich zwei Linien, die den unteren Zustand gemeinsam haben und zudem vergleichsweise intensiv sind. Es handelt sich um zwei R3 - Linien, deren oberer Zustand in unterschiedlichen Vibrationsbanden liegt. Da H_2O zur Klasse der asymmetrischen Kreiselmoleküle zählt, spaltet jedes Rotationsniveau in $2J + 1$ Unterniveaus mit den Quantenzahlen $\tau = -J, \dots, J$ auf. Es ist daher darauf zu achten, daß außer der Rotationsquantenzahl auch τ für beide unteren Zustände gleich ist. Nach der Zuordnung von Antipov *et al.* 1981 werden diese Bedingungen von den folgenden beiden Übergängen erfüllt:

$$(I) \quad (J'' = 3, \tau'' = -3) \rightarrow (J' = 4, \tau' = -4), (401) - \text{Bande}$$

$$(II) \quad (J'' = 3, \tau'' = -3) \rightarrow (J' = 4, \tau' = -3), (302) - \text{Bande}$$

Die entsprechenden Linien befinden sich bei 589.166 nm (II) bzw. 589.240 nm (I).

7.2 Diskussion der Doppelresonanzspektren

Aus den Daten von Antipov *et al.* 1981 und Moore *et al.* 1966 geht hervor, daß der oben angegebene Übergang (II) eng benachbart zu einer H_2O - Linie bei 589.151 nm liegt. Sie wurde von Antipov *et al.* als R4(302) - Linie identifiziert und hat demnach weder mit (I) noch mit (II) einen Zustand gemeinsam. Mit dem Verfahren der resonatorinternen Absorption konnten beide Linien nicht deutlich aufgelöst werden (vgl. Anhang A-1). Daher liegt es für die Doppelresonanz nahe, Übergang (I) zu pumpen, um auf diese Weise Übergang (II) ohne die störende überlagernde R4(302) - Linie nachzuweisen.

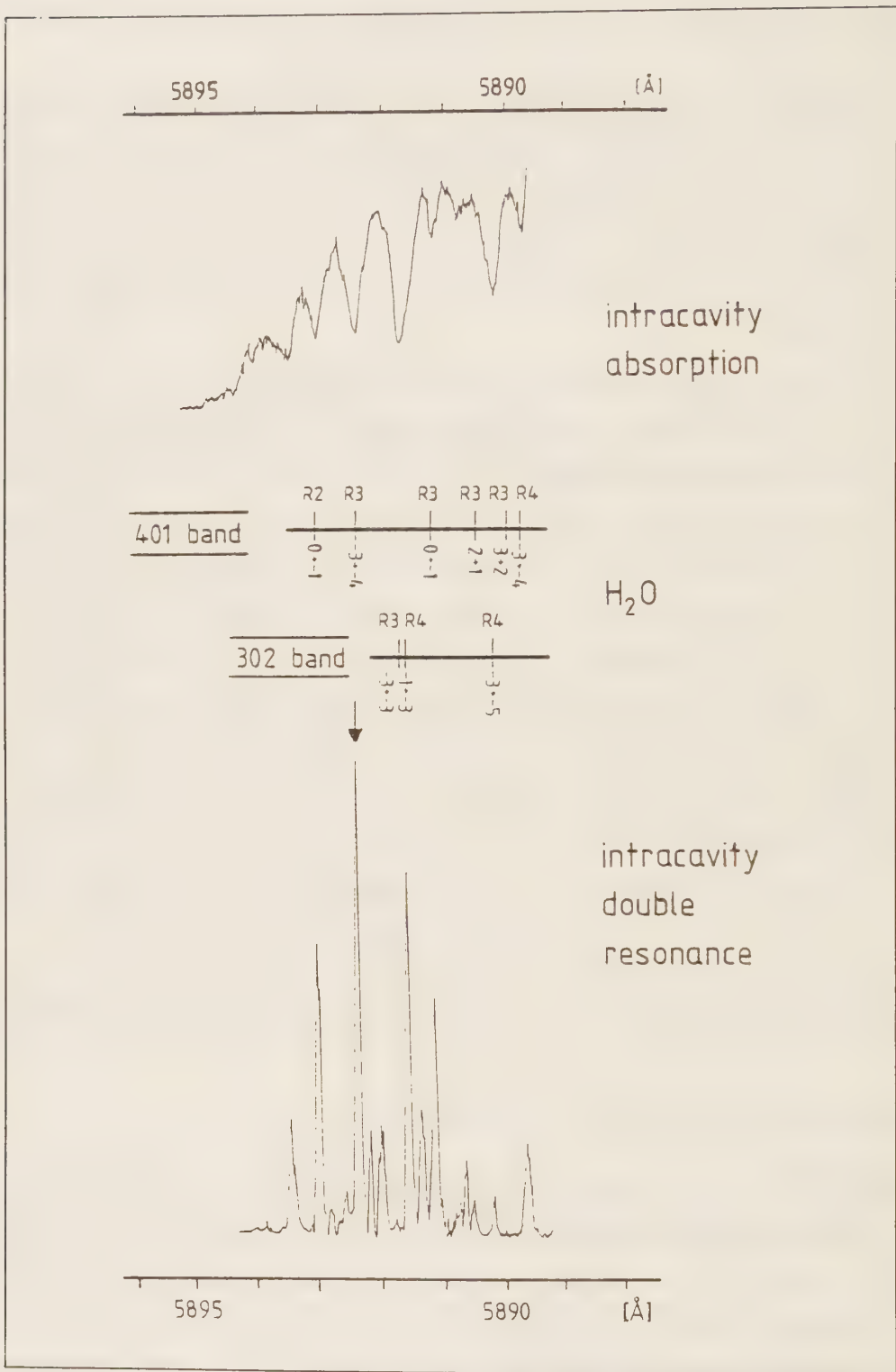


Abbildung 7.2: Einfach- und Doppelresonanzspektrum von H_2O um 589.2 nm. Zwischen den beiden Spektren ist die Zuordnung der Übergänge nach Antipov *et al.* (1981) angegeben. Die mit einem Pfeil markierte Linie im Doppelresonanzspektrum ist identisch mit dem gepumpten Übergang.

In Abbildung (7.2) ist das erhaltene Doppelresonanzspektrum (unten) im Vergleich mit dem einfachen resonatorinternen Absorptionsspektrum dargestellt. Auf den ersten Blick fällt auf, daß das Doppelresonanzspektrum bei weitem mehr und besser aufgelöste Linien als das einfache Absorptionsspektrum aufweist. Die deutlich bessere Auflösung ist auf die schmalbandige Pumpstrahlung von Laser A zurückzuführen. Die Verbreiterung der Linien als zeitabhängiger Effekt, der bei einfacher resonatorinterner Absorption eine Rolle spielt, entfällt beim doppelresonanten Nachweis.

Die im Doppelresonanzspektrum registrierten Linien sind in Abbildung (7.3) zusammengestellt. Die erste Spalte enthält die gemessenen Linienpositionen mit ihren statistischen Fehlern. In Spalte 2 sind die von Antipov *et al.* 1981 gemessenen und zugeordneten Linienpositionen im relevanten Wellenlängenbereich aufgeführt. Spalte 3 zeigt die von Antipov *et al.* zugeordneten Quantenzahlen. Z.B. bedeutet "R3(401) -2/-3", daß es sich um eine R3 - Linie handelt, deren oberer Zustand in der (401) - Vibrationsbande liegt. Die Rotations - Unterniveaus haben die Quantenzahlen $\tau'' = -2$ und $\tau' = -3$. In der letzten Spalte schließlich sind diejenigen Linien markiert, die auch in einfacher resonatorinterner Absorption beobachtet wurden. Mit xx sind die intensivsten Linien gekennzeichnet.

Als überraschendstes Resultat folgt aus Abbildung (7.3), daß Übergang (II), der als einziger im gewählten Wellenlängenbereich einen Zustand mit dem gepumpten Übergang (I) gemeinsam hat, kein Signal liefert. Die meisten der Linien, die sowohl von Antipov *et al.* als auch in resonatorinterner Absorption beobachtet wurden, erscheinen auch im Doppelresonanzspektrum. Darüber hinaus können jedoch neun unidentifizierte Linien eindeutig nachgewiesen werden.

Von den Linien, die sowohl bei Antipov *et al.* als auch in resonatorinterner Absorption am intensivsten sind, fehlt im Doppelresonanzspektrum neben dem oben erwähnten Übergang (II) nur die R4(302) - Linie bei 589.009 nm. Bemerkenswerterweise ist die Linie bei 589.151 nm, die an Stelle von Übergang (II) in Doppelresonanz erscheint, ebenfalls ein R4(302) - Übergang. Dies gibt Anlaß zu der Vermutung, daß die Identifizierung der beiden fraglichen Linien (589.166 nm bzw. 589.151 nm) möglicherweise nicht korrekt ist. Wären die Linien vertauscht, so würde sich das Problem der fehlenden Doppelresonanz zwischen den

Linienposition Doppelresonanz	Linienposition Antipov <i>et al.</i>	Zuordnung Antipov <i>et al.</i>	res.int. Absorption
5893.90(2)	-	-	-
5893.49(3)	5893.51	R3(401) -2/-3	xx
5893.03(3)	5893.05	R2(401) 0/-1	xx
5892.83(4)	-	-	-
5892.58(2)	5892.63	Q6(302) -5/-3	-
5892.42(2)	5892.40	R3(401) -3/-4	xx
5892.21(3)	-	-	-
5892.10(2)	-	-	-
5891.99(2)	-	-	-
5891.74(4)	-	-	-
-	5891.66	R3(302) -3/-3	xx
5891.55(3)	5891.51	R4(302) -1/-3	xx
5891.34(2)	-	-	-
5891.13(2)	5891.18	R3(401) 0/-1	xx
5890.72(3)	5890.75	-	x
5890.61(3)	5890.68	-	x
5890.48(3)	-	-	-
-	5890.33	R3(401) 2/1	-
5890.16(2)	-	-	-
-	5890.09	R4(302) -3/-5	xx
-	5889.86	R3(401) 3/2	-
5889.61(2)	5889.64	R4(401) -3/-4	xx

Abbildung 7.3: Positionen der vermessenen Doppelresonanzlinien (Spalte 1) sowie der von Antipov *et al.* 1981 zugeordneten Linien im entsprechenden Wellenlängenbereich (Spalte 2). Die Linienpositionen sind in Angstrom angegeben. In der letzten Spalte ist gekennzeichnet, ob der jeweilige Übergang mit resonatorinterner Absorption registriert werden konnte. Die intensivsten Linien sowohl nach Antipov *et al.* als auch in resonatorinterner Absorption sind durch xx hervorgehoben.

Übergängen (I) und (II) klären. Weiter würden *beide intensiven* R4(302) - Linien, die im untersuchten Wellenlängenbereich vorkommen, in Doppelresonanz nicht auftreten (aus Gründen, die zu klären bleiben).

Der doppelresonante Nachweis aller übrigen von Antipov *et al.* angegebenen

Linien ist auf die eingangs erwähnte Stoßkopplung zurückzuführen. Prinzipiell sollte dieses Problem durch eine Reduzierung des Druckes lösbar sein.

Bei den verbleibenden neun Linien, die weder in resonatorinterner Absorption noch von Antipov *et al.* beobachtet wurden, dürfte es sich um Übergänge handeln, mit denen vom oberen Pumpniveau in einem zweiten Absorptionsschritt höher angeregte Niveaus im elektronischen Grundzustand bevölkert werden. Eine Änderung des Pumpübergangs von Übergang (I) auf Übergang (II) führte im Doppelresonanzspektrum lediglich zu veränderten Intensitäten. Es wurden jedoch keine anderen Linien beobachtet. Dies ist ein weiterer Hinweis auf den dominierenden Einfluß von Stoßprozessen auf die Markierung der molekularen Zustände unter Atmosphärendruck.

ZWEITER TEIL:

DYNAMIK VON MULTIMODE - LASERN

Das dynamische Verhalten eines linearen cw Multimode - Lasers wurde experimentell analysiert und im Rahmen synergetischer Betrachtungsweise interpretiert. In Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte im Resonator wurden die Korrelationszeiten der Modenamplituden, die fraktale Dimensionalität des Systems sowie seine Kolmogorov - Entropie gemessen. Die experimentellen Resultate zeigen, daß sich sowohl bei geringen als auch bei hohen spektralen Leistungsdichten stochastische und chaotische Prozesse überlagern. Bei geringen spektralen Leistungsdichten werden Instabilitäten beobachtet, die sich in einer drastischen Abnahme der Modenkorrelationszeiten sowie einer ebenfalls diskontinuierlichen Änderung von fraktaler Dimensionalität und Kolmogorov - Entropie äußern. Diese Instabilitäten werden als Übergänge zwischen chaotischen Attraktoren interpretiert. Bei hohen spektralen Leistungsdichten erreicht die Modenkorrelationszeit einen konstanten Wert. In diesem Bereich dominieren stochastische Prozesse im Sinn von Multistabilität bezüglich koexistierender chaotischer Attraktoren. Die beobachteten Phänomene werden anschaulich mit Hilfe eines Systems zweier ineinandergeschachtelter, selbstbezüglicher Rückkoppelungsschleifen beschrieben. Die gekoppelten Größen sind dabei die für das Verhalten des Systems entscheidenden physikalischen Parameter.

8. Bemerkungen zur Dynamik dissipativer Systeme

Im zurückliegenden ersten Teil dieser Arbeit sind im wesentlichen Resultate vorgestellt worden, die ein umfassendes Verständnis von frequenzselektiven Verlustprozessen (resonatorinterne Absorption) in Multimode - Lasern vermitteln. Zudem wurden spezielle spektroskopische Methoden entwickelt und exemplarisch vorgeführt, die auf den genannten Prozessen beruhen.

Bevor im zweiten großen Gesamtkomplex der Arbeit das dynamische Verhalten von Multimode - Lasern auf wesentlich grundlegenderer Basis untersucht wird, ist es nötig, einige Begriffe und Zusammenhänge einzuführen, die im weiteren Verlauf vorausgesetzt bzw. detailliert werden. Diesen Zweck verfolgt der vorliegende Abschnitt 8, der zugleich als übergeordneter Rahmen für die gesamte Arbeit konzipiert ist.

8.1 Konservative und dissipative Strukturen

Für die klassische Vorgehensweise in den Naturwissenschaften ist das Prinzip des "Reduktionismus" von entscheidender Bedeutung. Es beinhaltet, daß sich jedes zu untersuchende System auf gewisse mikroskopische Eigenschaften "reduzieren" läßt, die als statisch im Sinne von unveränderlich gelten können.

Die ersten theoretischen Ansätze, die demgegenüber eine dynamische, prozeßorientierte Betrachtungsweise einführten, stammen aus den Gebieten der *Kybernetik* (Wiener 1948) und der *Allgemeinen Systemtheorie* (v. Bertalanffy 1968). Neben der Stabilisierung komplexer Systeme (Regelungstechnik) wurden hier erstmals Phänomene der Destabilisierung und Entwicklung neuer Strukturen betrachtet (positive Rückkoppelung).

Solche Ansätze haben in den Naturwissenschaften zu einer modifizierten, erweiterten Denkweise geführt. Ausgehend von physikalischen, chemischen und biologischen Fragestellungen entwickelten Haken (*Synergetik*, Haken 1983a), Prigogine (Nicolis und Prigogine 1977) und Eigen (Eigen und Winkler 1975) Theorien zur Entwicklung von Systemen, die sich durch ständige Wechselwirkung mit ihrer Umgebung auszeichnen. Solche Systeme werden gegenüber den in der klassischen Betrachtungsweise behandelten abgeschlossenen Systemen als offen bezeichnet.

Die erwähnten Theorien bestechen insbesondere durch ihre interdisziplinäre Bedeutung. So lassen sich die wesentlichen Aussagen auf ökologische und sogar soziokulturelle Bereiche übertragen (Jantsch 1982).

Vom physikalischen Standpunkt stellt die dynamische Behandlung offener Systeme eine wesentliche Erweiterung der Thermodynamik dar. Abbildung (8.1) gibt einen Überblick über die verschiedenen Bereiche einer derart erweiterten Thermodynamik.

Als die am einfachsten zu behandelnden physikalischen Systeme können Systeme gelten, die bezüglich ihrer Umgebung abgeschlossen sind und mit ihr weder Energie noch Materie austauschen. Sie werden durch die klassische Newtonsche Mechanik bzw. die Quantenmechanik beschrieben. (Es sei in diesem Zusammenhang darauf hingewiesen, daß die Quantenmechanik keine vollständige Theorie in mathematischem Sinne ist, vgl. d’Espagnat 1976.) Sämtliche in abgeschlossenen Systemen stattfindenden Prozesse sind sowohl räumlich als auch zeitlich symmetrisch. In der thermodynamischen Terminologie führt die Bedingung der Abgeschlossenheit zur Definition der *mikrokanonischen Gesamtheit*. Sie ist durch die thermodynamische Funktion der Entropie

$$S = -k \cdot \ln \omega(E, V, N) \quad (8.1)$$

charakterisiert, wobei $\omega(E, V, N)$ das reduzierte Phasenvolumen und E, V, N Energie, Volumen und Teilchenzahl des Systems sind. Die Entropie eines abgeschlossenen Systems ist zeitlich konstant. Das System befindet sich im thermodynamischen Gleichgewicht.

Bringt man ein System, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, in Kontakt mit einem Wärmebad der Temperatur T , so läßt man damit einen Energieaustausch des System mit seiner Umgebung, dem Wärmebad, zu. Durch die Kopplung mit dem Wärmebad hat man das System aus dem thermodynamischen Gleichgewicht gebracht; ein System in diesem Zustand bezeichnet man als dissipatives System. Es wird sich im Normalfall nach Herstellung des Kontaktes in ein neues thermodynamisches Gleichgewicht begeben, das durch die Temperatur des Wärmebades bestimmt ist. Dieser Prozeß verläuft irreversibel, d.h. mit Einführung der Dissipation (Verrückung aus der thermodynamischen

	STRUKTURBEWAHRENDE SYSTEME	EVOLVIERENDE SYSTEME
SYSTEM STRUKTUR	abgeschlossen konservativ (thermodynamischer Zweig)	offen dissipativ (fern vom thd. Gleichgewicht)
ENTROPIE - PRODUKTION	$\frac{dS}{dt} \geq 0$	$\frac{dS}{dt} \neq 0, \frac{d^2S}{dt^2} \neq 0$
SYMMETRIEN BESCHREIBUNG	2. Hauptsatz Zeit, Raum Lineare Newtonsche, Quantenmechanik	Theorem minimaler Entropieproduktion Raum Nichtlineare Thermodynamik

Abbildung 8.1: Überblick über die Eigenschaften konservativer und dissipativer Systeme und ihre thermodynamische Beschreibung (siehe auch Jantsch 1982).

Gleichgewichtslage) wird die zeitliche Symmetrie in der Beschreibung abgeschlossener Systeme gebrochen. Die Irreversibilität ist verbunden mit einer Zunahme der Entropie des Gesamtsystems, solange es sich auf den neuen thermodynamischen Gleichgewichtszustand hin bewegt. Das beschriebene System entspricht einer *kanonischen Gesamtheit*, deren Zustandsgröße die freie Energie $F = E - TS$ ist. Die entsprechende thermodynamische Funktion lautet:

$$F(T, V, N) = -kT \cdot \ln \int_E \omega(E, V, N) \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dE \quad (8.2)$$

Man kann zusätzlich zum Energieaustausch des Systems mit seiner Umgebung auch Materieaustausch zulassen. Die Thermodynamik definiert für diese Situation die *großkanonische Gesamtheit* mit der Zustandsgröße des großen thermodynamischen Potentials $\Theta = E - TS - \sum_j \mu_j N_j$ (μ_j = chemisches Potential der Teilchen N_j). Die zugehörige thermodynamische Funktion ist:

$$\Theta(T, V, \mu) = -kT \cdot \ln \sum_j \int_E \omega(E, V, N) \exp\left(-\frac{E - \mu_j N_j}{kT}\right) dE \quad (8.3)$$

Sowohl mikrokanonische als auch kanonische und großkanonische Gesamtheiten sind dadurch gekennzeichnet, daß in ihnen räumliche Symmetrien erhalten sind. Man kann sie daher als konservative, strukturbewahrende Systeme bezeichnen. Sie werden mit Hilfe der klassischen linearen Thermodynamik beschrieben, deren zweiter Hauptsatz ($\frac{dS}{dt} \geq 0$) die Bedeutung des thermodynamischen Gleichgewichtes widerspiegelt.

Falls die Randbedingungen des Systems eine Rückkehr zum thermodynamischen Gleichgewicht verhindern, so geht das System in einen Zustand minimaler Entropieproduktion über (*Theorem der minimalen Entropieproduktion*, Prigogine 1945). In diesem Zustand ist $\frac{d^2 S}{dt^2} = 0$, in seiner Umgebung ist $\frac{d^2 S}{dt^2} < 0$. Die Entropieproduktion $\frac{dS}{dt}$ erreicht einen konstanten minimalen Wert. Das Theorem der minimalen Entropieproduktion schließt den Fall des thermodynamischen Gleichgewichtszustandes ein.

Der Gültigkeitsbereich der linearen Thermodynamik beschränkt sich auf eine Umgebung des thermodynamischen Gleichgewichtes, innerhalb derer die verallgemeinerten thermodynamischen Flüsse J proportional zu den verallgemeinerten

thermodynamischen Kräften F sind. Der Proportionalitätskoeffizient ist der sogenannte "Onsager" - Koeffizient (Onsager 1931). Abbildung (8.2) enthält einige anschauliche Beispiele hierfür aus dem Gebiet der Transporttheorie.

	J	F	ONSAGER Koeffizient
FOURIER sches Gesetz	Wärmefluß	Temperaturgrad. ("Affinität")	kinetischer Koeffizient
FICK sches Gesetz	Diffusionsfluß	Konzentrationsgradient	Diffusionskonstante
OHM sches Gesetz	Ladungsfluß	Gradient des el. Potentials	el. Widerstand

Abbildung 8.2: Beispiele für lineare Transportgesetze. Die Onsager - Koeffizienten vermitteln den linearen Zusammenhang zwischen verallgemeinerten thermodynamischen Flüssen J und Kräften F .

Mit steigender Dissipation nimmt die Entropie eines Systems ab. Sie kann damit als Maß für die "Dissipativität" eines Systems herangezogen werden. Hieraus ergibt sich auf natürliche Weise die Definition eines systemspezifischen *Ordnungsparameters* (Landau und Lifschitz 1979), der so definiert ist, daß er mit abnehmender Entropie eines Systems abnimmt. Der Dissipationsgrad eines thermodynamischen Systems ist von außen über die Temperatur (bzw. einen entsprechenden Parameter) regulierbar. Sie hat damit die Funktion eines *externen Kontrollparameters* p . In realen physikalischen Systemen ist mit der Einführung von Dissipation die Existenz von Fluktuationen des Ordnungsparameters verbunden. In der Nähe des thermodynamischen Gleichgewichts (geringe Dissipation) besteht ein linearer Zusammenhang zwischen dem Dissipationsgrad und der mittleren Amplitude der Fluktuationen des Ordnungsparameters. Dies ist der Inhalt linearer Fluktuationen - Dissipations - Theoreme (Callen und Welton 1951).

Nichtlineare offene Systeme können sich bei genügender Dissipation (der erforder-

derliche kritische Dissipationsgrad ist systemspezifisch) vom Rückkehrmechanismus zum thermodynamischen Gleichgewicht lösen und aufgrund ihres nichtlinearen Charakters zu einer neuen Struktur entwickeln, die als dissipative Struktur bezeichnet wird. Dieses Verhalten nennt man *autokatalytisch*, da sich das System "aus eigener Kraft" im Sinne zunehmender Dissipation und somit entgegen dem Theorem der minimalen Entropieproduktion entwickelt. Der autokatalytische Prozeß wird durch die systemimmanenten Fluktuationen initiiert. Er führt vom "thermodynamischen Zweig" über eine transiente instabile Region in eine neue stabile Struktur. Die Entstehung einer solchen neuen Struktur schließt neben der Irreversibilität den Bruch räumlicher Symmetrien ein: die entstandene stabile Situation ist in einer Weise räumlich strukturiert, wie sie es vor Durchlaufen der Instabilität nicht war (vgl. z.B. die Bénard - Konvektion).

Es ist klar, daß derartige Abläufe nur durch eine Thermodynamik beschrieben werden können, die dem *nichtlinearen und dissipativen* Charakter der zu behandelnden Systeme Rechnung trägt. Dies tut die nichtlineare Ungleichgewichts - Thermodynamik, die von Prigogine begründet wurde. Die Änderung der Entropieproduktion in einem nichtlinearen, dissipativen System ist fern vom thermodynamischen Gleichgewicht definiert durch:

$$\frac{d^2 S}{dt^2} = \frac{d_F^2 S}{dt^2} + \frac{d_J^2 S}{dt^2} \quad (8.4)$$

Während in der linearen Thermodynamik $\frac{d_F^2 S}{dt^2} = \frac{d_J^2 S}{dt^2}$ ist (es gilt $F \sim J$), ist im nichtlinearen Bereich keine allgemeine Aussage über die Komponenten der Änderung der Entropieproduktion möglich. Für die nichtlineare Thermodynamik ist das Theorem der minimalen Entropieproduktion nicht mehr anwendbar. Für stabile nichtlineare dissipative Strukturen ist im allgemeinen $\frac{dS}{dt} \neq 0$ und $\frac{d^2 S}{dt^2} \neq 0$. Stabilitätskriterien für nichtlineare dissipative Strukturen werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

Bei hoher Dissipation und insbesondere in der Nähe von Instabilitäten geht der lineare Zusammenhang zwischen Dissipation und Fluktuationsamplitude verloren. Die Formulierung nichtlinearer Fluktuations - Dissipations - Relationen befindet sich derzeit in der Entwicklung (vgl. West und Lindenberg 1984).

8.2 Stabilität in dissipativen Strukturen

Im Rahmen der linearen Thermodynamik ergibt sich aus dem Theorem der minimalen Entropieproduktion das Kriterium $\frac{d^2S}{dt^2} = 0$ für die Stabilität eines Zustandes. Dies äußert sich darin, daß ein System, das aus seiner Gleichgewichtslage ausgelenkt wird, solange seine Entropieproduktion vermindert ($\frac{d^2S}{dt^2} < 0$), bis es einen stabilen Zustand minimaler Entropieproduktion erreicht hat. Man bezeichnet eine stabile Lösung des Gleichungssystems, das das System beschreibt, allgemein als *Attraktor*.

Solange die Dissipation eines Systems gering ist und insbesondere noch keinen kritischen Wert erreicht hat, kann die Stabilität von integrierbaren Systemen mit den üblichen Verfahren der linearen Stabilitätsanalyse untersucht werden. Für die meisten Probleme der nichtlinearen Thermodynamik ist jedoch die Bedingung der Integrabilität nicht erfüllt. Eine Stabilitätsanalyse ist dann mit einer Methode möglich, die als *zweite Methode von Ljapunov* bekannt ist. Sie ist unabhängig von der Integrabilität des Systems und direkt anwendbar auf nichtlineare Systeme bezüglich Lösungen, die sowohl orts- als auch zeitabhängig sein können.

Zur Beschreibung der Methode wird von dem folgenden einfachen nichtlinearen Differentialgleichungssystem ausgegangen, wie es typischerweise in Raten-gleichungssystemen vorkommt:

$$\frac{d\mathbf{x}(t)}{dt} = \mathbf{F}(\mathbf{x}(t)) \quad (8.5)$$

wobei $\mathbf{x} = (x_1, \dots, x_n)$ und $\mathbf{F} = (F_1, \dots, F_n)$. Es soll die Stabilität des Differentialgleichungssystems bezüglich einer Lösung $\mathbf{x}_0$ untersucht werden. Mit anderen Worten: Ist $\mathbf{x}_0$ ein Attraktor? Dazu wird eine *Ljapunov - Funktion* $V = V(x_1, \dots, x_n)$ betrachtet, die in einer Umgebung G von $\mathbf{x}_0$ definit ist. Für die zeitliche Ableitung von V erhält man:

$$\frac{dV}{dt} = \sum_j \frac{\partial V}{\partial x_j} \frac{\partial x_j}{\partial t} = \mathbf{F} \cdot \nabla V \quad (8.6)$$

Es gelten die folgenden Theoreme für die Stabilität der Lösung $\mathbf{x}_0$ in G :

1. V und $\frac{dV}{dt}$ haben entgegengesetztes Vorzeichen in G oder $\frac{dV}{dt} = 0$ in $G \Rightarrow \mathbf{x}_0$ ist stabil.

2. V und $\frac{dV}{dt}$ haben entgegengesetztes Vorzeichen in $G \Rightarrow \mathbf{x}_0$ ist asymptotisch stabil.
3. Es existieren Werte von $V \cdot \frac{dV}{dt} > 0$ in $G \Rightarrow \mathbf{x}_0$ ist instabil.

Wie man sieht, muß zur Anwendung der genannten Kriterien das Differentialgleichungssystem (8.5) nicht explizit gelöst werden. Allerdings gibt die zweite Methode von Ljapunov nicht an, wie man eine Ljapunov - Funktion V für ein gegebenes Gleichungssystem konstruiert. Anschaulich hat V die Bedeutung eines Potentials in der Umgebung der zu untersuchenden Lösung. Die Extremaleigenschaften von V bestimmen die Stabilität der Lösung.

Um eine Ljapunov - Funktion für thermodynamische Systeme zu erhalten, entwickelt man zunächst die Entropie in der Umgebung der betrachteten Lösung:

$$S = S_0 + \delta S + \frac{1}{2} \delta^2 S \quad (8.7)$$

Hierbei charakterisiert δ die Variation der Entropie S im Sinne der Differentialgeometrie. In der Nähe des thermodynamischen Gleichgewichtes ist immer $\delta^2 S \leq 0$. Dies gilt auch fern vom thermodynamischen Gleichgewicht, solange die elementare Annahme eines lokalen Gleichgewichtszustands erfüllt ist (Glansdorff und Prigogine 1971). Die Größe $\delta^2 S$ hat demnach für die Thermodynamik die Bedeutung einer Ljapunov - Funktion V . Die Stabilität beliebiger thermodynamischer Systeme kann mit Hilfe der zeitlichen Ableitung $\frac{d}{dt}(\delta^2 S)$ gemäß den Theoremen (1) bis (3) studiert werden.

Stellt man die zeitliche Entwicklung der Lösung des Systems (8.5) mit beliebigen Anfangsbedingungen $\mathbf{x}(0)$ im Phasenraum mit n geeigneten Koordinaten dar, so erhält man eine Trajektorie $\mathbf{x}(t)$ in diesem n - dimensionalen Phasenraum. Entwickelt man das Gleichungssystem (8.5) gemäß $\mathbf{x}(t) = \mathbf{x}_0 + \delta \mathbf{x}(t)$ um eine punktförmige Lösung $\mathbf{x}_0$ und linearisiert $\mathbf{F}$ bezüglich $\delta \mathbf{x}(t)$, so erhält man für die einzelnen Komponenten:

$$\frac{d}{dt} \delta x_i(t) = \sum_j \frac{\partial F_i}{\partial x_j} \delta x_j(t) \quad (8.8)$$

Die Koeffizienten $\frac{\partial F_i}{\partial x_j}$ bilden eine Matrix L_{ij} , deren Diagonalisierung auf die Ljapunov - Exponenten λ_i führt. Die Lösungen von (8.8) lassen sich dann darstellen

als:

$$\delta x_i(t) = \delta x_i(0) \exp(\lambda_i t) \quad (8.9)$$

Das Konzept der Ljapunov - Exponenten geht auf Oseledec (1968) zurück. Ihr Bezug zu einer verallgemeinerten Entropie (Kolmogorov - Entropie) wurde von Benettin *et al.* (1976) diskutiert.

Für negative Realteile von λ_i konvergiert $\delta x_i \rightarrow 0$, d.h. bezüglich der Komponente x_i wirkt $\mathbf{x}_0$ als Attraktor. Umgekehrt liegt für positives λ_i ein abstoßender Einfluß von $\mathbf{x}_0$ auf x_i vor. Gilt $\lambda_i < 0$ für alle i , so ist $\mathbf{x}_0$ Attraktor für $\mathbf{x}(t)$.

Aus Gleichung (8.9) erhält man für das Volumenelement $\delta V(t) = \delta x_1(t) \cdot \dots \cdot \delta x_n(t)$ einer Lösung im Phasenraum:

$$\delta V(t) = \delta V(0) \exp\left(\sum_i \lambda_i t\right) \quad (8.10)$$

Das bedeutet: $\mathbf{x}_0$ ist nur dann Attraktor, wenn sich das Volumen der Lösung im Phasenraum bezüglich eines vollständigen Ensembles von Anfangsbedingungen mit zunehmender Zeit verringert ($\sum_i \lambda_i < 0$). Wählt man als Anfangsbedingung bereits die stabile Lösung $\mathbf{x}_0$, so ist die Trajektorie $\mathbf{x}(t) = \text{const.}$ Dieser Fall entspricht insbesondere einem abgeschlossenen System im thermodynamischen Gleichgewicht. Hier ist das Volumen der Lösung im Phasenraum nach dem Theorem von Liouville konstant.

Mit Hilfe der Ljapunov - Exponenten läßt sich die Stabilität dissipativer Strukturen sehr bequem und übersichtlich charakterisieren.

In einem eindimensionalen Lösungsraum kann als Attraktor lediglich eine punktförmige Lösung im Phasenraum existieren, damit $\lambda < 0$ erfüllt ist (stationäre Lösung). Für einen zweidimensionalen Lösungsraum ist im Fall $(\lambda_1, \lambda_2) = (-, -)$ der Attraktor ebenfalls punktförmig. Möglich ist jedoch auch ein Attraktor $(\lambda_1, \lambda_2) = (-, 0)$: hier handelt es sich um eine geschlossene Kurve (periodische Lösung). Im Fall $(\lambda_1, \lambda_2) = (-, +)$ existiert auch unter der Bedingung $\sum_i \lambda_i < 0$ keine stabile Lösung (Sattelpunkt). Für ein Gleichungssystem, dessen Trajektorie im dreidimensionalen Phasenraum verläuft, gibt es die stabilen Möglichkeiten:

$(-, -, -)$ punktförmige Lösung,

$(-, -, 0)$ ebene geschlossene Kurve (Kreis),

$(-, 0, 0)$ räumliche geschlossene Kurve (Torus).

Zusätzlich kann bei mindestens dreidimensionalen Problemen eine stabile Lösung $(-, 0, +)$ mit $\sum_i \lambda_i < 0$ existieren (Newhouse et al. 1978). Ein sehr bekanntes Beispiel hierfür stellen die *Lorenz - Gleichungen* dar (Lorenz 1963). Der Attraktor eines solchen Gleichungssystems ist jedoch keine geschlossene Trajektorie im Phasenraum. Er wird daher als *seltsamer Attraktor* bezeichnet. Er repräsentiert eine Lösung, die zwar volumenstabil ist ($\sum_i \lambda_i < 0$), die jedoch in einer Komponente einen destabilisierenden Beitrag $\lambda_3 > 0$ aufweist. Eine derartige Lösung ist weder stationär noch periodisch; sie wird *chaotisch* oder *turbulent* genannt. Ein wesentliches Merkmal chaotischer Systeme ist ihre extreme Empfindlichkeit gegenüber geringen Änderungen der Anfangsbedingungen.

Es muß betont werden, daß chaotische Lösungen nicht etwa stochastisch interpretiert werden dürfen. Die Lorenz - Gleichungen stellen z.B. ein exakt determiniertes Gleichungssystem dar, das bereits ohne jegliche interne oder externe Fluktuationen chaotische Lösungen liefert. Auf der anderen Seite ist chaotisches Verhalten gegenüber quasiperiodischem Verhalten abzugrenzen. Quasiperiodische Lösungen entstehen durch Überlagerung endlich vieler periodischer Komponenten. Ihre Trajektorie im Phasenraum ist eine geschlossene Kurve.

Folgende praktisch verwertbare Kriterien dafür, daß ein seltsamer Attraktor vorliegt, sind bekannt:

- Die Autokorrelationsfunktion von $\mathbf{x}(t)$ muß für $\tau \rightarrow \infty$ verschwinden:

$$\lim_{\tau \rightarrow \infty} \Phi(\tau) = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \langle \mathbf{x}(t) \mathbf{x}(t + \tau) \rangle = 0 \quad (8.11)$$

Dadurch werden periodische sowie quasiperiodische Lösungen ausgeschlossen. Ein Maß für die Irregularität von chaotischen Lösungen ist die Korrelationszeit τ_{corr} , nach der die Autokorrelationsfunktion auf einen bestimmten Bruchteil von $\Phi(0)$ abgefallen ist. Nach dem Wiener - Chinchin - Theorem liefert die Fouriertransformation der Autokorrelationsfunktion das Leistungsspektrum $S(f)$ von $\mathbf{x}(t)$:

$$S(f) = \int_{-\infty}^{\infty} \Phi(\tau) \exp(2\pi i f \tau) d\tau \quad (8.12)$$

Chaotisches Verhalten ist charakterisiert durch ein kontinuierliches Leistungsspektrum $S(f)$. Im Gegensatz dazu zeigen periodische Lösungen scharfe Spitzen bei den entsprechenden Frequenzen. Eine Abgrenzung chaotischen Verhaltens gegenüber rein stochastischen Prozessen ist allerdings anhand von $\Phi(\tau)$ und $S(f)$ nicht ohne weiteres möglich.

- Einem seltsamen Attraktor, der eine Lösung im n - dimensionalen Phasenraum beschreibt, kann man eine Dimensionalität $D < n$ zuordnen, die nicht ganzzahlig ist und als *fraktale* oder *Hausdorff - Dimensionalität* bezeichnet wird. (Hausdorff 1919, Mandelbrot 1977). Diese Dimensionalität steht in direktem Zusammenhang mit der Kolmogorov - Entropie des seltsamen Attraktors und daher mit den Ljapunov - Exponenten des Systems (siehe Aizawa 1982). Von Grassberger und Procaccia (1983a,b) wurde ein Verfahren vorgeschlagen, mit dessen Hilfe sich die Hausdorff - Dimensionalität wie auch die Kolmogorov - Entropie aus der *räumlichen* (bezüglich des Phasenraumes) Korrelationsfunktion der entsprechenden Lösung näherungsweise ermitteln läßt.

8.3 Instabilitäten und die Rolle von Fluktuationen

In einem stabilen System, dessen Struktur konservativ oder dissipativ sein kann, führt eine Erhöhung des Kontrollparameters p (Steigerung der Dissipation) zu einer Auslenkung des Systems aus seiner stabilen Lage. Erreicht der Kontrollparameter einen kritischen Wert p_{crit} , so besitzt das System eine Lösung, auf die die ursprüngliche stabile Lösung nicht mehr als Attraktor wirkt. Die Steigerung des Kontrollparameters läßt sich dadurch veranschaulichen, daß das "Potential" verformt wird, das durch das zugrundeliegende Gleichungssystem definiert ist. Wird $p > p_{crit}$, so wirkt eine neue stabile Lösung als Attraktor auf das System bzw. seine Trajektorie im Phasenraum wirken. In der "Potential" - Darstellung entsteht durch die Überschreitung von p_{crit} mindestens ein neues Extremum.

Eine Ljapunov - Funktion V hat die anschauliche Bedeutung eines solchen "Potentials". Für $p < p_{crit}$, also z.B. für den thermodynamischen Zweig einer Lösung, weisen V und $\frac{dV}{dt}$ entgegengesetztes Vorzeichen auf (stabile Lösung: thermodynamisches Gleichgewicht). Im Fall $p > p_{crit}$ ist das System bezüglich der

alten stabilen Lösung (dem thermodynamischen Gleichgewicht) instabil. Nach dem dritten Theorem von Ljapunov ist dann $V \cdot \frac{dV}{dt} > 0$. Auf Grund des definiten Charakters von V in der Umgebung der betrachteten Lösung wechselt daher $\frac{dV}{dt}$ das Vorzeichen bei $p = p_{crit}$. Diese Situation ist exakt als *marginale Stabilität* gekennzeichnet: es gilt $\frac{dV}{dt} = 0$. Für die Entwicklung des Systems handelt es sich dabei um den Übergang von einer stabilen in eine neue stabile Struktur. Es hat sich eingebürgert, die Lösung an der Stelle $p = p_{crit}$ allgemein als *Instabilität* zu bezeichnen.

In der klassischen Thermodynamik von Gleichgewichtssystemen sind derartige Instabilitäten als *thermodynamische Phasenübergänge* seit langem bekannt. Zur Charakterisierung dieser Phasenübergänge wird das thermodynamische Potential des relevanten Systems betrachtet. Für eine kanonische Gesamtheit ist dies die freie Energie $F = E - TS$; der Kontrollparameter ist die Temperatur T . Die Entropie des Systems, die dem Ordnungsparameter entspricht, erhält man durch:

$$S = -\frac{\partial F}{\partial T} \quad (8.13)$$

Nochmalige Differentiation nach T liefert die spezifische Wärme:

$$c = T \cdot \frac{\partial^2 F}{\partial T^2} \quad (8.14)$$

Ein thermodynamischer Phasenübergang erster Ordnung ist dadurch definiert, daß sich bei kontinuierlicher Variation der Temperatur T von $T < T_{crit}$ nach $T > T_{crit}$ die Entropie an der Stelle T_{crit} diskontinuierlich ändert. Falls sich an der Stelle T_{crit} die Entropie kontinuierlich, die spezifische Wärme jedoch diskontinuierlich ändert, so spricht man von einem thermodynamischen Phasenübergang zweiter Ordnung.

In vielen Fällen lassen sich die thermodynamischen Phasenübergänge mit Hilfe eines verallgemeinerten anstelle des thermodynamischen Potentials und mit entsprechendem Kontrollparameter anstelle der Temperatur auf Instabilitäten fern vom thermodynamischen Gleichgewicht übertragen. Dies wird am Beispiel quantenoptischer Systeme später diskutiert.

Die oben beschriebene Entstehung einer dissipativen Struktur aus dem thermodynamischen Zweig eines Systems läßt sich auch folgendermaßen interpretieren:

Im Gegensatz zu derjenigen stabilen Lösung, die nach Überschreiten des kritischen Kontrollparameters auf das System als Attraktor wirkt, ist die analytische Fortsetzung des thermodynamischen Zweiges für $p > p_{crit}$ instabil bezüglich des entstandenen "Potentials". Es existieren damit für $p > p_{crit}$ prinzipiell zwei Lösungen: die instabile analytische Fortsetzung des thermodynamischen Zweiges und eine stabile dissipative Struktur. Die "Aufspaltung" der Lösung eines Systems bei p_{crit} wird als *Bifurkation* bezeichnet. Im geschilderten Fall wird das System in die stabile Alternative übergehen. Es sind jedoch fern vom thermodynamischen Gleichgewicht auch Situationen möglich, in denen bei einem kritischen Kontrollparameter eine Bifurkation in zwei oder mehrere stabile Strukturen *und* eine instabile analytische Fortsetzung der alten Struktur auftritt.

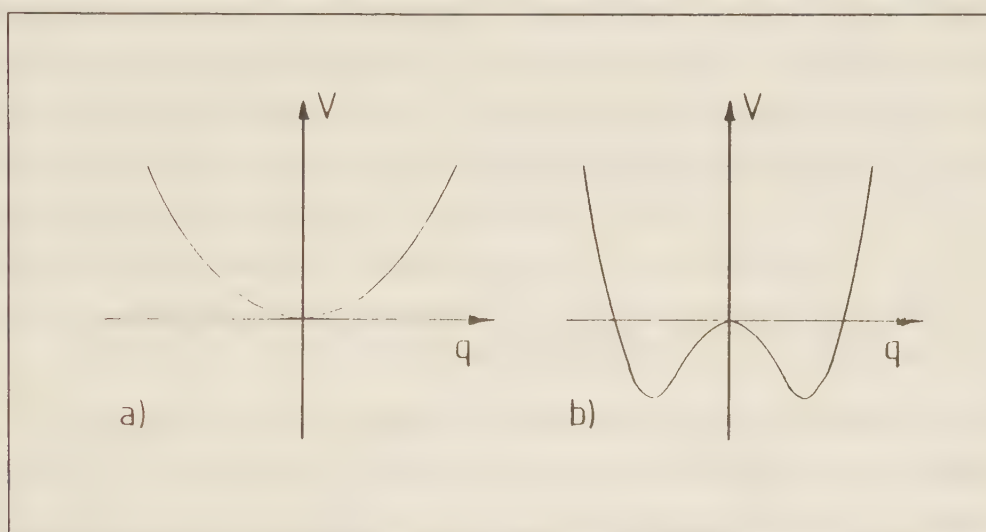


Abbildung 8.3: Thermodynamisches Potential V als Funktion einer Systemvariablen q für punktförmige Attraktoren, a) vor Durchlaufen einer Bifurkation (eine stationäre Lösung); b) nach Durchlaufen der Bifurkation (zwei koexistierende stationäre Lösungen).

Bifurkationen führen im allgemeinen zu einer Veränderung des Typs von Attraktoren für das betrachtete System. Einer der bekanntesten Bifurkationsmechanismen ist die *Hopf* - Bifurkation. Durch sie wird der Übergang eines punktförmigen Attraktors in eine geschlossene Kurve im Phasenraum beschrieben. Eine Bifurkation, die von einem punktförmigen Attraktor zu zwei ebenfalls punktförmigen Attraktoren führt, zeigt Abbildung (8.3). Im einzelnen beschreiben (8.3a) das "Potential" für $p < p_{crit}$ (vor der Bifurkation) und (8.3b) das "Poten-

tial" für $p > p_{crit}$. Es ist klar erkennbar, daß zwei grundsätzlich gleichwertige stabile Lösungen entstehen (*Bistabilität*).

Die Theorie der Bifurkationen läßt eine enorme Vielfalt von Übergängen zwischen Strukturen mit stationären und periodischen Lösungen zu. Mit ihrer Hilfe läßt sich jedoch *nicht* der Übergang von periodischen zu chaotischen Lösungen beschreiben. Bisher ist noch keine allgemeine Klassifizierung derjenigen Instabilitäten gelungen, die zu seltsamen Attraktoren, also zu chaotischem Verhalten, führen. Im wesentlichen zeigen die Beobachtungen drei verschiedene Szenarios, die von Eckmann 1981 zusammengefaßt dargestellt wurden.

Im Rahmen der bisherigen Überlegungen wurde in keiner Weise von stochastischen Elementen Gebrauch gemacht. Die physikalische Realität zwingt jedoch auf Grund der Fluktuations - Dissipations - Theoreme dazu, derartige stochastische Elemente in die Beschreibung aufzunehmen. In der Umgebung des thermodynamischen Gleichgewichts lassen sich quantitative Aussagen über den Zusammenhang zwischen der Dissipation eines Systems und den auftretenden internen Fluktuationen treffen (lineare Fluktuations - Dissipations - Theoreme). Die Kenntnis dieser quantitativen Zusammenhänge ist Voraussetzung für die Beschreibung von Phasenübergängen im thermodynamischen Gleichgewicht, wie sie mit Hilfe der Theorie der Renormierungsgruppen möglich ist (Wilson 1971).

Bei zunehmender Entfernung vom thermodynamischen Gleichgewicht und insbesondere in der Nähe von Instabilitäten wird der Zusammenhang zwischen der Fluktuation des Ordnungsparameters und dem Dissipationsgrad des Systems nichtlinear. Der Einfluß von Fluktuationen kann derart dominant werden, daß die Schwankungen des Ordnungsparameters vergleichbar mit dessen Absolutbetrag werden.

Damit ist klar, daß Fluktuationen im Hinblick auf Instabilitäten realer Systeme von erheblicher Bedeutung sind. So spielen Fluktuationen z.B. eine entscheidende Rolle bei Bifurkationen, die zu mehreren stabilen alternativen Strukturen führen können. Die "Entscheidung" für eine dieser Strukturen wird dann stochastischer Natur sein, wenn die möglichen Alternativen thermodynamisch gleichwertig sind. Hat ein System eine dissipative Struktur eingenommen, so wird es diese Struktur nur dann als stabil "empfinden", wenn die internen Fluktuationen nicht stärker

sind als die Wirkung des Attraktors, der die stabile Lösung repräsentiert.

Im Falle einer bistabilen Lösung, wie sie Abbildung (8.3b) darstellt, können genügend starke Fluktuationen dazu führen, daß sich das System abwechselnd in einer der beiden stabilen Lösungen aufhält. Dies gilt in gleicher Weise für *multistabile* Lösungen in höherdimensionalen Phasenräumen.

Es ist bemerkenswert, daß eine Instabilität, also der Übergang von einem stabilen Zustand eines Systems in einen anderen, ausdrücklich Bestandteil der thermodynamischen Beschreibung ist. Ein Beispiel für eine derartige Instabilität ist die spontane Emission in einem quantenmechanischen System mit diskreten Energieeigenwerten. Die Beschreibungsweise der Quantenmechanik enthält jedoch lediglich Ausgangs- und Endzustand des Systems vor und nach dem Übergang. Die aus der Quantenelektrodynamik resultierenden Vakuumfluktuationen erscheinen unter thermodynamischem Gesichtspunkt als dasjenige stochastische Element, das einen Endzustand des Systems unter verschiedenen Alternativen auswählt. Der Übergang selbst, also die Instabilität des Systems, ist in der quantenmechanischen Formulierung nicht enthalten.

8.4 Rauschen in multistabilen und chaotischen Systemen

Im Fall zweier oder mehrerer koexistierender Attraktoren für ein System wurde der Begriff einer verallgemeinerten *Bistabilität* (vgl. Abbildung (8.3b)) bzw. *Multistabilität* eingeführt. Im Potentialbild befinden sich zwischen den verschiedenen stabilen Lösungen Barrieren, die die Wirkungsbereiche der einzelnen Attraktoren voneinander trennen. Das System zeigt multistabiles Verhalten, wenn die Höhe der Potentialbarriere relativ zur Fluktuationsamplitude des Ordnungsparameters genügend klein ist, um fluktuationsinduzierte Übergänge zwischen verschiedenen Attraktoren zu ermöglichen. Man kann dann (für einen beliebigen, aber festen Kontrollparameter p) eine mittlere *Aufenthaltswahrscheinlichkeit* des Systems in den verschiedenen Attraktionsbereichen sowie eine mittlere *Übergangswahrscheinlichkeit* für das System zwischen verschiedenen Attraktionsbereichen definieren. So erhält man eine Beschreibungsweise, die Analogien zum quantenmechanischen Tunneleffekt aufweist. Sie ist jedoch insofern von wesentlich allgemeinerer Natur, als sie den Übergangsprozeß zwischen den

Attraktoren in die Beschreibung mit einbezieht. Die Bedeutung der quantenmechanischen Tunnelwahrscheinlichkeit wird durch den allgemeineren Begriff der Übergangswahrscheinlichkeit übernommen.

Aus dieser Übergangswahrscheinlichkeit läßt sich eine mittlere "first passage" - Zeit t_{fp} ableiten, nach der das System im Mittel den betreffenden Attraktionsbereich verlassen hat (siehe Haken 1983b, Singh 1984). Die Zeit t_{fp} ist eine Funktion der Fluktuationsamplitude des Ordnungsparameters und der Höhe der "Potentialbarriere" zwischen den Attraktionsbereichen. Sowohl die Fluktuationsamplitude des Ordnungsparameters als auch die Höhe der "Potentialbarriere" sind abhängig vom Kontrollparameter des Systems: durch eine Änderung von p wird sowohl der Dissipationsgrad des Systems (und damit die Fluktuationsamplitude) geändert als auch das relevante "Potential" verformt (siehe Abbildung (8.4)).

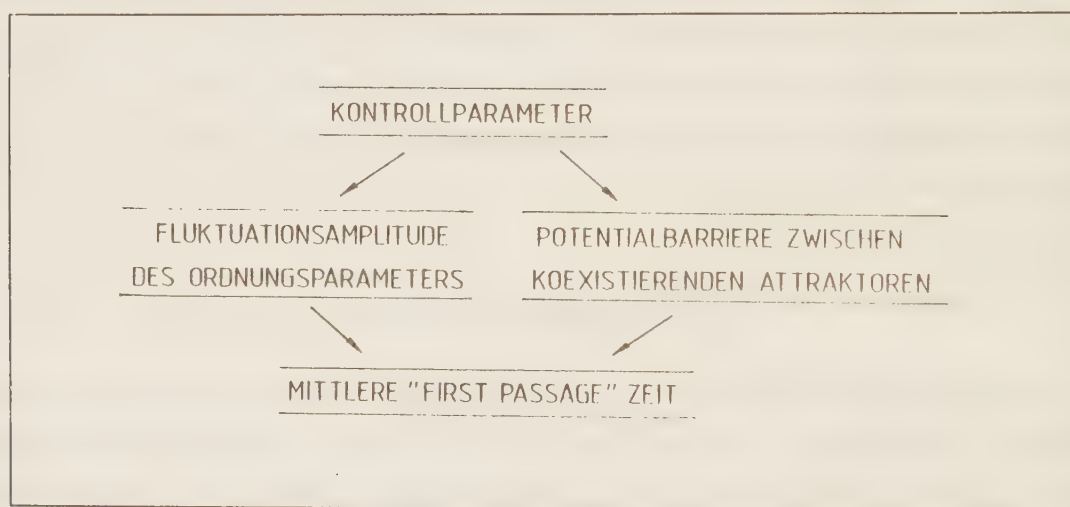


Abbildung 8.4: Abhängigkeit der "mean first passage time" vom Kontrollparameter des Systems. Durch den Kontrollparameter werden sowohl Fluktuationsamplitude als auch Form des Potentials beeinflußt.

Wesentlich für das Phänomen der Multistabilität ist, daß dem System bei konstantem Kontrollparameter mehrere koexistierende Attraktionsbereiche zur Verfügung stehen. Diese Situation ist von der Entstehung neuer dissipativer Strukturen nach dem Durchlaufen von Instabilitäten zu unterscheiden, bei denen räumliche Symmetrien gebrochen und neue Ordnungen geschaffen werden. Bezüglich multistabilen Verhaltens spricht man von fluktuationsinduzierten Übergängen zwischen verschiedenen koexistierenden Attraktionsbereichen. Dabei können die Fluktuationen intrinsischer Natur oder extern vorgegeben sein.

Wenn der Übergang von einem Attraktionsbereich in einen anderen durch Fluktuationen bedingt wird, sind die Lösungen des Systems vor und nach dem Übergang nicht korreliert. Die Autokorrelationsfunktion der Lösung wird daher spätestens nach der mittleren Aufenthaltsdauer des Systems in einem Attraktionsbereich verschwinden. Da die mittlere Aufenthaltsdauer nichts anderes als die mittlere “first passage” - Zeit t_{fp} ist, gilt für multistabile Systeme:

$$\Phi(t_{fp}) = \langle x(0)x(t_{fp}) \rangle = 0 \quad (8.15)$$

Betrachtet man Systeme mit regulären Attraktoren, also solche, deren Lösungen innerhalb eines Attraktors streng korreliert sind (stationäre und periodische Lösungen), so ist t_{fp} durch die zeitliche Autokorrelationsfunktion vollständig bestimmt. Die Zeit t_{fp} ist ein eindeutiges Maß für die mittlere “Lebensdauer” einer Lösung innerhalb eines Attraktors.

Im Fall chaotischer Attraktoren kompliziert sich der Sachverhalt, da gemäß Gleichung (8.11) die Autokorrelationsfunktion der Lösung bereits innerhalb eines Attraktors verschwindet, sofern sich das System nur lange genug in diesem Attraktor aufhält. Wenn die mittlere Korrelationszeit τ_{corr} für die Lösung innerhalb eines chaotischen Attraktors groß gegenüber t_{fp} ist so wird sich als insgesamt resultierende Korrelationszeit immer t_{fp} ergeben, da das System bereits einen anderen Attraktor aufgesucht hat, bevor τ_{corr} abgelaufen ist. Ist dagegen τ_{corr} klein gegenüber t_{fp} , so überlagern sich im Resultat der Autokorrelationsfunktion $\Phi(t_{fp})$ zwei Effekte:

- *Deterministische Diffusion* (Geisel und Nierwetberg 1982, Grossmann und Fujisaka 1982) zwischen verschiedenen Teilbereichen eines seltsamen Attraktors. Deterministische Diffusion tritt bereits in Abwesenheit jeglicher Art von Fluktuationen auf und ist durch die Zeitkonstante τ_{corr} charakterisiert.
- Multistabiles Verhalten des Systems zwischen verschiedenen koexistierenden Attraktoren, das durch die Zeitkonstante t_{fp} charakterisiert ist. Multistabiles Verhalten entsteht erst durch den Einfluß interner oder externer Fluktuationen und ist damit rein stochastischer Natur.

Nach Gleichung (8.12) erhält man aus der Autokorrelationsfunktion $\Phi(\tau)$ einer Zeitfunktion ihr Leistungsspektrum $S(f)$. Man kann grundsätzlich zwei Klassen

von monoton abklingenden Autokorrelationsfunktionen (AKF) unterscheiden:

1. AKF mit exponentiellem Abfall:

$$\Phi(\tau) \sim \exp(-\lambda\tau) \quad (8.16)$$

Eine AKF dieser Form ist typisch für Markov'sche stochastische Prozesse mit $1/\lambda$ als charakteristischer Korrelationszeit. Im Grenzfall $1/\lambda \rightarrow 0$ wird $\Phi(\tau)$ zu einer δ - Funktion, deren Fouriertransformierte konstant ist. Da die Fouriertransformierte das Leistungsspektrum $S(f)$ liefert, liegt in diesem Fall "weißes Rauschen" vor.

2. AKF mit algebraischem Abfall:

$$\Phi(\tau) \sim \tau^{-\nu} \quad (8.17)$$

Ein bekanntes Beispiel für solches Verhalten stellen die sogenannten "long time tails" in der Hydrodynamik dar. Eine unkomplizierte Lösung für die Fouriertransformierte von $\Phi(\tau)$ existiert lediglich für $0 < \nu < 1$. In diesem Bereich ergibt sich als Leistungsspektrum $S(f) \sim f^{-\alpha}$ mit $\alpha = 1 - \nu$ und damit $1 > \alpha > 0$. Sowohl für $\nu = 0$ als auch für $\nu = 1$ ist dies Resultat nicht gültig. Insbesondere ist im Fall $\nu = 0$ die AKF eine Konstante und das Leistungsspektrum daher eine δ - Funktion. Somit liegt für $\nu = 0$ eine periodische Zeitfunktion vor. Für $-1 < \nu < 0$ läßt sich zeigen (Geisel et al. 1985), daß unter gewissen Einschränkungen bezüglich f ein Leistungsspektrum $S(f) \sim f^{-\alpha}$ mit $2 > \alpha > 1$ resultiert.

Mittlerweile ist in der Natur eine außerordentliche Vielzahl von Systemen bekannt, deren Leistungsspektrum eine Frequenzabhängigkeit $f^{-\alpha}$ mit $0 < \alpha < 2$ aufweist. Hierbei handelt es sich durchweg um vieldimensionale dissipative Systeme, die nichtlinear gekoppelte Parameter als treibende Kräfte enthalten (vgl. Shaw 1981). Von Press wurden 1978 zahlreiche Beobachtungen von $f^{-\alpha}$ - Rauschen in verschiedenen Bereichen zusammengestellt (siehe auch Referenzen dort). Am bekanntesten ist hierbei elektrisches $1/f$ - Rauschen, das dem (weißen) Nyquist - Rauschen in dissipativen Systemen überlagert ist. Ebenso treten $f^{-\alpha}$ - Fluktuationen in vielen Bereichen der Festkörperphysik auf (Dutta und Horn 1981). Auch in meteorologischen und klimatischen Abläufen erkennt man bei

immer mehr Prozessen ein $f^{-\alpha}$ - Leistungsspektrum. Selbst Untersuchungen verschiedener musikalischer Stilrichtungen ergaben Leistungsspektren mit deutlicher $f^{-\alpha}$ - Abhängigkeit. In der Biophysik fluktuiert das Potential der Nervenmembranen nach einem $f^{-\alpha}$ - Gesetz. Schließlich gibt es in der Astrophysik verschiedenste Beispiele für $f^{-\alpha}$ - Verhalten, die von solaren Zyklen (solare Normalschwingungen) über Pulsationen von weißen Zwergen und Zentralsternen von planetaren Nebeln bis zu Intensitätsschwankungen von Quasaren reichen. 1982 wurde von Arecchi et al. ein $f^{-\alpha}$ - Leistungsspektrum in einem quantenoptischen System nachgewiesen.

Es gibt inzwischen zahlreiche Ansätze, die einen engen Zusammenhang zwischen dem chaotischen Verhalten eines Systems und $f^{-\alpha}$ - Leistungsspektren nahelegen. Das Konzept der Selbstähnlichkeit spielt hierbei eine zentrale Rolle (Mandelbrot 1977, Barenblatt 1978). Es wurde von Manneville 1980 mit der Dynamik chaotischer Systeme in Verbindung gebracht.

In realen dissipativen Systemen sind dem (rein deterministischen) chaotischen Verhalten immer stochastische Elemente (Fluktuationen) überlagert. Die Existenz solcher stochastischer Elemente manifestiert sich beispielsweise im Phänomen der Multistabilität und erschwert eine quantitative Analyse des Skalierungsverhaltens des Leistungsspektrums entscheidend. Auf Möglichkeiten, wie bei experimentellen Daten zwischen dem Einfluß stochastischen und chaotischen Verhaltens unterschieden werden kann, wird später näher eingegangen.

9. Der Laser als dissipatives System

Bei der Behandlung quantenoptischer Systeme (Laser) betrachtet man Wechselwirkungen zwischen einem aktiven (Gain-) Medium und einem Strahlungsfeld in einem Resonator, die durch die semiklassischen *Maxwell - Bloch - Gleichungen* beschrieben werden können. Die Struktur der Maxwell - Bloch - Gleichungen ist mathematisch identisch mit der Struktur der Lorenz - Gleichungen (Haken 1975). Somit können quantenoptische Systeme dissipative Strukturen und Instabilitäten in allen beschriebenen Varianten aufweisen.

Im Gain - Medium eines Lasers wird mit Hilfe externer Energiezufuhr (Pumpleistung) eine Besetzungsinversion bezüglich derjenigen Energieniveaus erzeugt, zwischen denen stimulierte Emission stattfinden soll. Unterhalb einer *kritischen Inversion*, die sich als Folge einer *kritischen Pumpleistung* einstellt, wird jedoch lediglich spontane Emission auftreten. Die resultierende räumlich und zeitlich inkohärente Strahlung gehorcht einer Bose - Einstein - Statistik. Erhöht man die Pumpleistung, so wird schließlich eine kritische Inversion und damit die Laserschwelle erreicht. Die vom Gain - Medium emittierte Strahlung wird nun kohärent und repräsentiert damit einen außerordentlich hohen Ordnungsgrad. Als Ordnungsparameter des Lasers kann die Amplitude des Strahlungsfeldes definiert werden. Aus ihr ergibt sich als Maß für die erzielte Ordnung die Leistung des Lasers. Da durch die Resonatorbedingungen nur bestimmte diskrete Eigenfrequenzen (Moden) verstärkt werden, bietet es sich an, die Leistung pro Mode als normierte spektrale Leistungsdichte einzuführen.

In thermodynamischer Betrachtungsweise ist durch die Steigerung der Pumpleistung und die damit verbundene Zunahme der Inversion die Dissipation des Systems bis zum Erreichen einer Instabilität (der Laserschwelle) erhöht worden. Die Pumpleistung (bzw. die Inversion) besitzt die Funktion eines externen Kontrollparameters. An der Laserschwelle wird der thermodynamische Zweig der Lösung der Maxwell - Bloch - Gleichungen instabil und es entsteht eine neue stabile Lösung, die sich durch ihre Kohärenzeigenschaften auszeichnet. (Im allgemeinen kann eine solche Bifurkation zu mehreren koexistierenden stabilen Lösungen führen.) Aus der ungeordneten spontanen Emission mit Bose - Einstein - Statistik wird bei Überschreiten der Laserschwelle ein kohärentes Strahlungsfeld, das (zumindest im

Einmodenfall) einer Poisson - Statistik gehorcht.

In Abbildung (9.1) ist die Leistung pro Mode P_m in Abhängigkeit von der Pumpleistung P skizziert. Bei der Schwellenleistung P_{thr} ergibt sich eine kontinuierliche Änderung von P_m . Die Steigung der Kurve ("efficiency") ändert sich dagegen diskontinuierlich. Die Analogie zu einem thermodynamischen Phasenübergang zweiter Ordnung ist offensichtlich (Graham und Haken 1970, DeGiorgio und Scully 1970).

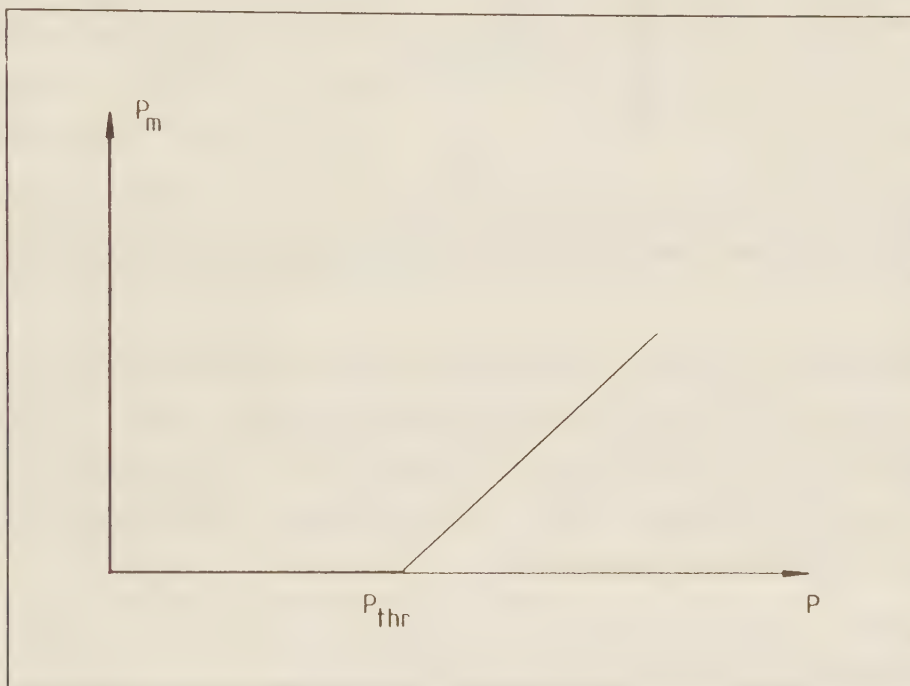


Abbildung 9.1: Schematische Darstellung eines Phasenüberganges zweiter Ordnung an der Laserschwelle.

In Abbildung (9.2) sind die thermodynamischen Größen den analogen quantenoptischen Parametern gegenübergestellt. Ein allgemeiner Formalismus für die Behandlung der relevanten Parameter in quantenoptischen Systemen fern vom thermodynamischen Gleichgewicht wurde von Haken auf der Basis der Ginzburg - Landau - Theorie der Supraleitung entwickelt (siehe Haken 1983a).

Während die Laserschwelle einem thermodynamischen Phasenübergang zweiter Ordnung entspricht, können bei weiterer Erhöhung der Pumpleistung Instabilitäten auftreten, bei denen sich die Laserleistung diskontinuierlich ändert. Derartige Instabilitäten entsprechen thermodynamischen Phasenübergängen erster Ord-

	THERMODYNAMIK	QUANTENOPTIK
Kontrollparameter p	Temperatur	Inversion bzw. Pumpleistung
Potential V	Freie Energie	Laser - "Potential"
$\frac{\partial V}{\partial p}$	Entropie	Laserleistung
$\frac{\partial^2 V}{\partial p^2}$	spez. Wärme	"efficiency"

Abbildung 9.2: Gegenüberstellung analoger thermodynamischer und quantenoptischer Zustandsgrößen.

nung. Sie wurden von Hillman *et al.* 1984 in einem Farbstoffringlaser beobachtet. Der Laser, der oberhalb der Schwelle zunächst im "single mode" - Betrieb arbeitete, emittierte nach Durchlaufen einer weiteren Instabilität zwei Moden zugleich. In der Umgebung der entsprechenden kritischen Pumpleistung wurde zudem ein hystereseartiges Verhalten beobachtet.

Phasenübergänge erster Ordnung können außer durch Erhöhung des Kontrollparameters z.B. durch eine Erhöhung der Freiheitsgrade des Systems erzielt werden. Eine Möglichkeit hierfür ist die Modulation des Systems mit Hilfe eines injizierten externen Signals oder durch einen sättigbaren Absorber. Der erwähnte Hystereseeffekt ist typisch für Phasenübergänge erster Ordnung. Er ist verantwortlich für das Phänomen der optischen Bistabilität in Lasern, die von der verallgemeinerten Bi- und Multistabilität zu unterscheiden ist.

Bei weiterer Erhöhung der Pumpleistung werden weitere Instabilitäten (Bifurkationen) durchlaufen, bis der Laser schließlich chaotisches Verhalten zeigt. Die verschiedenartigen bisher bekannten Übergänge von regulärem zu chaotischem Verhalten in Lasern wurden z.B. von Abraham 1983 und Weiss 1984 beschrieben. Ein genereller Überblick über Instabilitäten in Lasersystemen wurde von Abraham *et al.* 1985 zusammengestellt.

In Multimode - Lasern ist bereits direkt nach Überschreiten der Laserschwelle eine notwendige Bedingung dafür erfüllt, daß sich chaotisches Verhalten einstellen kann. Wenn N Moden unabhängig voneinander oszillieren, besitzt das System im allgemeinen $(N + 2)$ Freiheitsgrade: der Lösungsraum des Systems ist $(N + 2)$ - dimensional. Bei mindestens drei Freiheitsgraden kann nach Newhouse *et al.* 1978 ein chaotischer Attraktor entstehen. In der Praxis beträgt die Modenanzahl in linearen Farbstofflasern einige 100 bis 1000. Daher liegt die Vermutung nahe, daß Multimode - Laser bereits unmittelbar oberhalb der Laserschwelle zu chaotischem Verhalten übergehen können. Die Bifurkation, die bei der kritischen Inversion auftritt, führt neben der instabilen Fortsetzung des thermodynamischen Zweigs zu einer stabilen Lösung, die im chaotischen Fall durch einen (oder mehrere ko-existierende) chaotischen Attraktor repräsentiert ist. Allgemeine Korrespondenzkriterien für Instabilitäten in Multimode- und Single - Mode - Lasern wurden von Lugiato und Narducci 1985 behandelt.

Für die einzelnen Moden eines Multimode - Lasers wurde von Brunner *et al.* 1985 im Rahmen einer numerischen Analyse vorgeführt, daß die Modenamplituden unter bestimmten Randbedingungen starke, unregelmäßige Schwankungen aufweisen. Dieses Resultat wurde (ohne die Verwendung quantitativer Argumente wie fraktaler Dimensionalitäten, Ljapunov - Exponenten oder Kolmogorov - Entropie) *ad hoc* als *chaotisches* Verhalten interpretiert.

Die Tatsache, daß in der Intensität einzelner Moden starke Fluktuationen auftreten, wurde bereits von Baev *et al.* 1980 beobachtet und von Atmanspacher *et al.* 1985 zur Beschreibung von resonatorinternen Absorptionsprozessen benutzt. Dabei wurde ein theoretisches Modell verwendet, das auf rein *stochastischem* Verhalten beruht (siehe Abschnitt 2.3).

10. Modenlebensdauern in cw Multimode - Lasern

10.1 Modenlebensdauern als Modenkorrelationszeiten

Die mittlere Lebensdauer t_{mode} einer longitudinalen Mode eines Multimode - Lasers repräsentiert die typische Zeitskala einer Systemeigenschaft, deren Amplitude einen Ordnungsparameter des Systems darstellt. Als solche läßt sich t_{mode} im Zusammenhang mit den vorangegangenen Ausführungen auf eine neue, sehr grundsätzliche Weise interpretieren. Hierzu werden die beiden Zeitkonstanten τ_{corr} und t_{fp} verwendet, die mit der Zeitskala derjenigen Systemeigenschaft identifiziert werden, deren Amplitude gleichzeitig Ordnungsparameter ist. Die Korrelationszeit τ_{corr} ist nur in chaotischen Attraktoren von Bedeutung, da sie in regulären Attraktoren nicht begrenzt ist. Die mittlere "first passage" - Zeit t_{fp} spielt immer dann eine Rolle, wenn koexistierende Attraktoren vorliegen, zwischen denen sich das System unter dem Einfluß von stochastischen Fluktuationen hin und her bewegt.

Damit kann man vier Fälle unterscheiden:

1. Einzelner regulärer Attraktor

Die Korrelationszeit innerhalb des Attraktors ist unbegrenzt, t_{fp} ist nicht definiert. Die mittlere Modenlebensdauer ist somit ebenfalls unbegrenzt: $t_{mode} \rightarrow \infty$.

2. Koexistierende reguläre Attraktoren

Die Korrelationszeit innerhalb eines Attraktors ist wiederum unbegrenzt. Für die mittlere Modenlebensdauer ergibt sich daher die mittlere "first passage" - Zeit: $t_{mode} = t_{fp}$.

3. Einzelner chaotischer Attraktor

Eine Zeitkonstante t_{fp} ist nicht definiert. Gemäß Gleichung (8.11) ergibt sich jedoch eine mittlere Korrelationszeit τ_{corr} . Für die mittlere Modenlebensdauer gilt damit: $t_{mode} = \tau_{corr}$.

4. Koexistierende chaotische Attraktoren

In diesem Fall existieren drei Möglichkeiten:

(a) $\tau_{corr} \gg t_{fp}$

Da im Mittel das System in einen anderen Attraktor überwechselt, bevor die Korrelationszeit τ_{corr} innerhalb eines Attraktors abgelaufen ist, wird die mittlere Modenlebensdauer durch die mittlere “first passage” - Zeit definiert: $t_{mode} = t_{fp}$.

(b) $\tau_{corr} \ll t_{fp}$

Die Gesamtkorrelationszeit des Ordnungsparameters ist durch die Korrelationszeit τ_{corr} im chaotischen Attraktor definiert. Für die mittlere Modenlebensdauer gilt in diesem Fall: $t_{mode} = \tau_{corr}$.

(c) $\tau_{corr} \simeq t_{fp}$

Wenn τ_{corr} und t_{fp} in der gleichen Größenordnung liegen, tragen beide Zeitskalen zur Gesamtkorrelationszeit der Moden bei. Die mittlere Modenlebensdauer ergibt sich aus einer Überlagerung von τ_{corr} und t_{fp} .

Während sich im Fall (1) eine unbegrenzte Modenlebensdauer ergibt, liefern die Situationen (2), (3), (4a) und (4b) eine eindeutige Zuordnung der Modenlebensdauer zur mittleren “first passage” - Zeit t_{fp} bzw. der Korrelationszeit τ_{corr} innerhalb eines seltsamen Attraktors. Lediglich der Fall (4c) führt zu einer Modenlebensdauer, die nicht mehr τ_{corr} oder t_{fp} alternativ zugeordnet werden kann, sondern eine Überlagerung beider darstellt.

Wie sich herausstellen wird (siehe Abschnitt 12), sind die unter (4) aufgeführten Fälle für das Verhalten des untersuchten Multimode - Lasersystems relevant. Auf Möglichkeiten, die zu einer Differenzierung zwischen beiden Zeitkonstanten führen können, wird später eingegangen. Zunächst soll in Abschnitt 10.2 ein phänomenologisches Konzept für die Modenlebensdauern in Multimode - Lasersystemen vorgestellt werden, das direkt an die im ersten Teil der Arbeit erhaltenen Resultate (siehe Abschnitte 2.3, 5.1, 5.2) anschließt.

10.2 Modenlebensdauern als selbstbezügliche Größen

Aus der Analyse des Ratengleichungssystems, die in Abschnitt 2 vorgestellt wurde, folgt gemäß Gleichung (2.13), daß eine verlängerte Modenlebensdauer t_{mode} zu einer Abnahme der spektralen Breite $\Delta\lambda$ der Laseremission führt:

$$\Delta\lambda \sim (t_{mode})^{-1/2} \quad (10.1)$$

Diese Abhängigkeit wird durch die nichtlineare Modenkopplung verursacht, die über die Wechselwirkung zwischen Strahlungsfeld und Gain - Medium stattfindet. Da die Moden im Flügel des Gain - Profils einer niedrigeren Verstärkung ausgesetzt sind als die Moden im Zentrum des Gain - Profils, werden die Modenintensitäten über die erwähnte nichtlineare Kopplung umverteilt. Intensive Moden werden auf Kosten ohnehin schon schwacher Moden weiter verstärkt. Auf Grund der Zeitabhängigkeit dieses Effektes wird die Laseremission bei zunehmender Modenlebensdauer schmalbandiger.

Bei konstanter Gesamtausgangsleistung P des Farbstofflasers definiert die spektrale Breite $\Delta\lambda$ die spektrale Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$. Dies bedeutet im Zusammenhang mit Gleichung (10.1), daß eine Zunahme der Modenlebensdauer eine wachsende spektrale Leistungsdichte verursacht.

Auf der anderen Seite bedingt eine wachsende spektrale Leistungsdichte einen zunehmenden Einfluß von Fluktuationen auf die Intensität einzelner Moden. Auf diese Weise entsteht eine Rückwirkung der spektralen Leistungsdichte auf die Modenlebensdauer, wie sie in Abschnitt 2.3 ausführlich dargestellt wurde: die Modenlebensdauer geht bei wachsender spektraler Leistungsdichte zurück.

Die wechselseitige Beziehung zwischen Modenlebensdauer und spektraler Leistungsdichte kann als sogenanntes *selbstbezügliches System* (siehe dazu Hofstadter 1979) betrachtet werden: Die Modenlebensdauer regelt sich über die Zwischenschritte, die in Abbildung (10.1a) dargestellt sind, am Ende selbst. Eine erhöhte Modenlebensdauer bewirkt eine spektrale Verengung der Laseremission und damit eine Erhöhung der spektralen Leistungsdichte. Hierdurch wächst der Einfluß von Intensitätsfluktuationen in den einzelnen Moden, und die Modenlebensdauer wird reduziert. Der beschriebene Kontrollprozeß verhindert, daß das System spontan

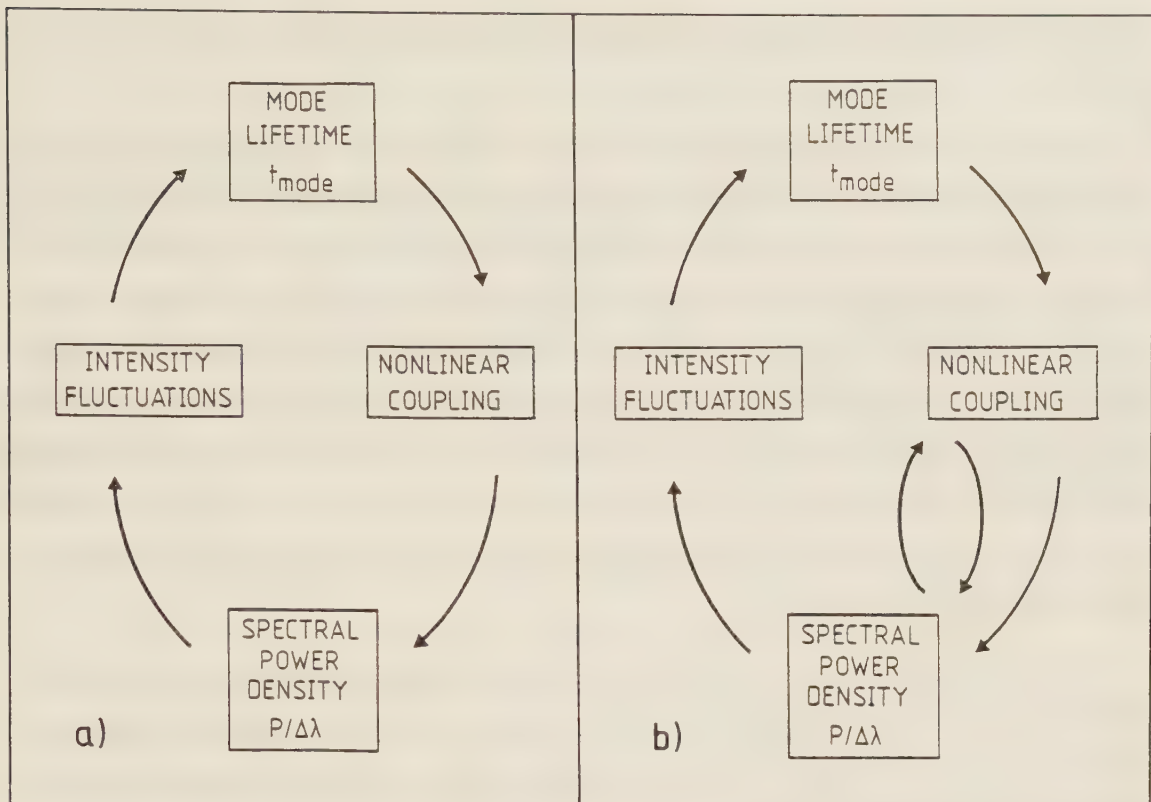


Abbildung 10.1: a) Schematische Darstellung der selbstbezüglichen Rückkoppelungsschleife zwischen der Modenlebensdauer und der spektralen Leistungsdichte. Die Modenlebensdauer wirkt über die nichtlineare Modenkopplung auf die spektrale Leistungsdichte. Auf der anderen Seite modifiziert eine veränderte spektrale Leistungsdichte den Einfluß von Intensitätsfluktuationen auf die Lebensdauer einzelner Moden. b) Erweiterung des in (a) beschriebenen Modells um eine zusätzliche Rückkoppelungsschleife zwischen spektraler Leistungsdichte und nichtlinearer Kopplung. Diese zusätzliche Schleife wird bei kritischen Werten $(P/\Delta\lambda)_{\text{crit}}$ initiiert und führt zu diskreten Änderungen des Inhomogenitätsgrades im Gain - Medium.

in Single - Mode - Betrieb übergeht, da dieser Fall eine unbegrenzte Modenlebensdauer erfordern würde. Der selbstbezügliche Charakter des Systems garantiert, daß sich zu jeder gegebenen Laserleistung ein endlicher Gleichgewichtswert für die Modenlebensdauer einstellt.

Unter Berücksichtigung rein stochastischer Prozesse wurde in Abschnitt 2.3 abgeleitet, daß die Modenlebensdauer bei wachsender spektraler Leistungsdichte abnimmt. Im Detail zeigt die Modenlebensdauer jedoch ein Verhalten, das sich nicht auf der rein stochastischen Basis von Fluktuationen beschreiben läßt. Dieses Verhalten wird in Abschnitt 12 untersucht. Es führt zu einer modifizierten Betrachtungsweise, die - wie bereits angedeutet wurde - stochastische und chaotische Komponenten beinhaltet. Einige begriffliche Voraussetzungen für diese Betrachtung

tungsweise sollen im folgenden Teil dieses Abschnitts phänomenologisch motiviert werden.

In einem idealisierten homogenen Gain - Medium mit N unabhängig voneinander oszillierenden longitudinalen Moden besitzt das Lasersystem im allgemeinen $N + 2$ Freiheitsgrade. Bei sehr breitbandiger Laseremission ist $N > 1000$, und die Anzahl der Freiheitsgrade kann näherungsweise mit N gleichgesetzt werden. Wenn das Gain - Medium inhomogene Beiträge enthält, so sind die betroffenen Moden miteinander verkoppelt und oszillieren nicht mehr unabhängig voneinander. Dies zeigt auch eine numerische Analyse von Brunner *et al.* 1985. Im Fall vieler gekoppelter Moden (äquivalent mit großen inhomogenen Beiträgen zum Gain - Profil) kann sich die Anzahl der Freiheitsgrade des Systems auf einen kleinen Bruchteil der Modenanzahl reduzieren.

Der Inhomogenitätsgrad im Gain - Medium kann durch die spektrale Leistungsdichte im Laserresonator beeinflußt werden (z.B. durch räumliche Inhomogenitäten). Daher muß der in Abbildung (10.1a) skizzierte Kontrollprozeß erweitert werden durch eine zusätzliche Rückkoppelungsschleife zwischen der spektralen Leistungsdichte und der nichtlinearen Modenkopplung, die durch Inhomogenitäten im Gain - Medium beeinflußt wird. Die resultierende ineinandergeschachtelte Selbstbezüglichkeit ist in Abbildung (10.1b) illustriert. Sobald eine erhöhte spektrale Leistungsdichte den Inhomogenitätsgrad im Gain - Medium erhöht, wird die Modenkopplung in folgender Weise verändert:

Sei M die Anzahl der Freiheitsgrade des Systems, die als identisch mit der Anzahl *unabhängig* voneinander oszillierender Moden angenommen wird. N ist die Gesamtzahl der Moden bei einer bestimmten spektralen Leistungsdichte. Das Verhältnis N/M (≥ 1) ist dann ein Maß für die Inhomogenität des Gain - Mediums. Wenn der Inhomogenitätsgrad (N/M) durch eine erhöhte spektrale Leistungsdichte verringert wird, so wächst die Anzahl unabhängig voneinander oszillierender Moden. Mit anderen Worten: die nichtlineare Modenkopplung ändert sich und verursacht zugleich eine Veränderung der spektralen Breite $\Delta\lambda$ und damit der spektralen Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$.

Der durch die innere Schleife in Abbildung (10.1b) beschriebene Prozeß sollte lediglich bei bestimmten kritischen Werten $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ anlaufen, da N und M

ganzzahlig sind und N/M sich nur um diskrete Beträge ändern kann. Bei jedem kritischen Wert $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ ist zu erwarten, daß das System die innere Rückkoppelungsschleife in Abbildung (10.1b) durchläuft. Daraufhin stellt sich über die äußere Schleife ein neuer Gleichgewichtszustand zwischen spektraler Leistungsdichte und Modenlebensdauer ein.

Die Darstellung der Gain - Inhomogenitäten durch N/M suggeriert die Vorstellung von M Modenpaketen, die aus jeweils streng gekoppelten Moden bestehen. Die Moden eines Modenpaketes oszillieren unabhängig von Moden anderer Pakete. Damit zeigt das Gesamtsystem kooperative Phänomene auf zwei verschiedenen Ebenen:

- Die kooperative Wirkung der Teilchen im Gain - Medium führt zu kohärenter Strahlung in Form einzelner longitudinaler Lasermode.
- Auf Grund inhomogener Beiträge im Gain - Medium kann der Fall eintreten, daß die einzelnen Moden in einer Weise kooperieren, die zur Bildung von Modenpaketen führt. Dies entspricht einer Reduktion der Freiheitsgrade des Systems von N Moden zu M Modenpaketen.

11. Experimentelle Bestimmung allgemeiner Systemparameter von Lasern

11.1 Messung von Modenkorrelationszeiten

Die durchschnittlichen Korrelationszeiten von longitudinalen Moden in einem Multimode - Lasersystem sind als durchschnittliche Modenlebensdauern durch das Verfahren der resonatorinternen Absorption experimentell zugänglich. Bei bekannten Absorptionskoeffizienten können sie nach dem modifizierten Beerschen Gesetz (siehe Gleichung 2.12) bestimmt werden.

Um den Einfluß zusätzlicher Elemente im Lasersystem möglichst gering zu halten, wurde der im Resonator ohnehin vorhandene atmosphärische Wasserdampf als Absorber verwendet. Wasserdampf hat gegenüber molekularem Sauerstoff den Vorteil, daß er auch im Emissionsmaximum von Rhodamin 6G absorbiert. Auf diese Weise ist es möglich, Modenlebensdauern bis zu sehr hohen spektralen Leistungsdichten im Resonator zu messen.

Zunächst müssen dazu die Absorptionskoeffizienten geeigneter H_2O - Linien bestimmt werden. Die ausgewählten Linien sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt. Die Liniennummern, ihre spektrale Position und die Zuordnung der Quantenzahlen stammen von Antipov *et al.* 1981.

Linie Nr.	Position (cm^{-1})	Zuordnung
198	16852.80	P2 (401)
199	16850.83	P2 (401)

Beide Linien gehören zur (401) - Bande des elektronischen Grundzustandes von H_2O . Sie sind nicht von anderen Übergängen überlagert und daher gut für eine quantitative Untersuchung geeignet. Bei einem Abstand von ungefähr 2 cm^{-1} liefern sie unabhängige Resultate für die Lebensdauern derjenigen Moden, die innerhalb der jeweiligen Linienbreite liegen.

Zur Bestimmung der Absorptionskoeffizienten der beiden Linien wurde das in Abschnitt 5.3 vorgeschlagene Verfahren angewendet. Die experimentellen Einzelheiten stimmen im Wesentlichen mit dem in Abschnitt 4 beschriebenen Aufbau

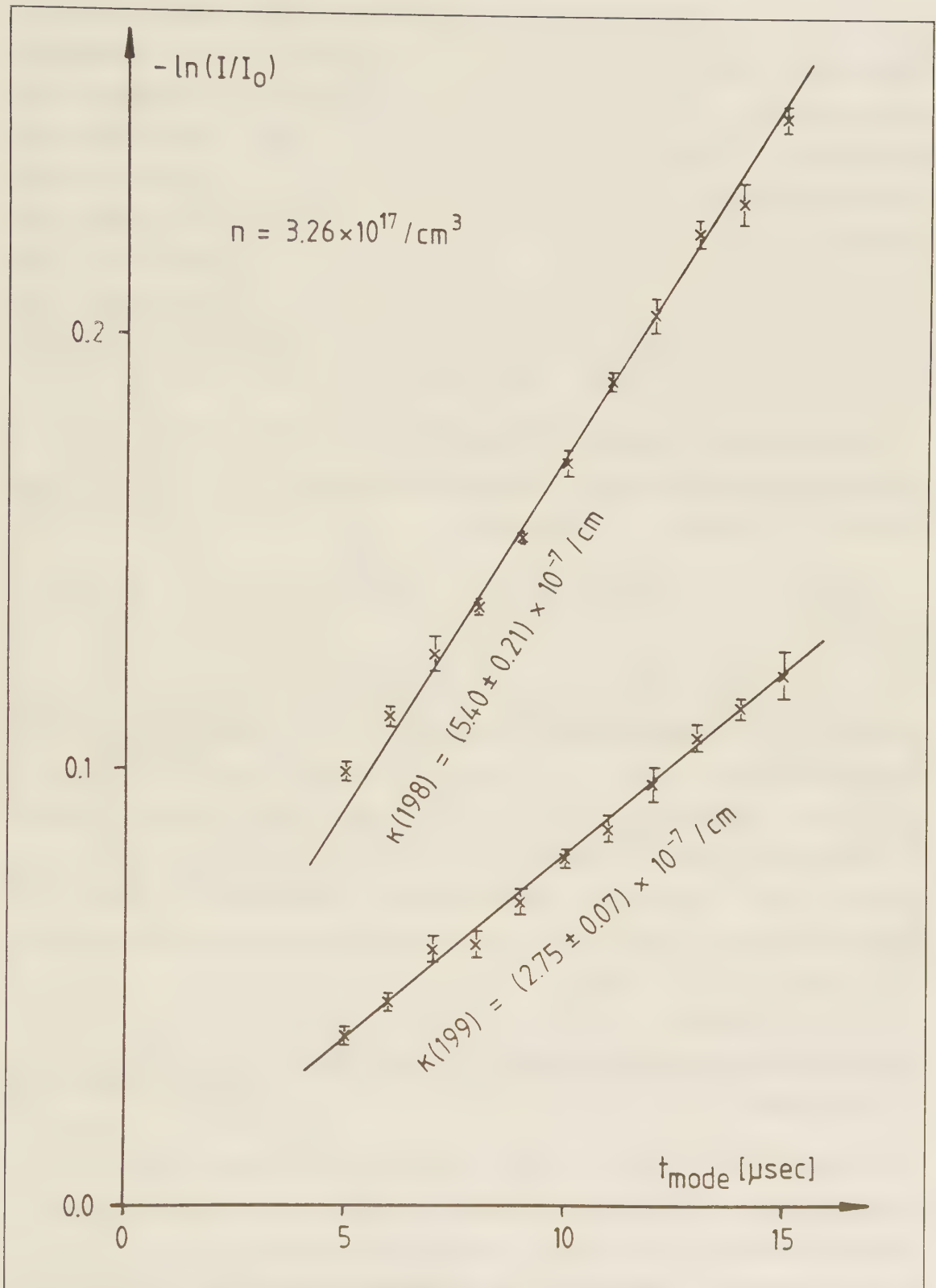


Abbildung 11.1: Bestimmung der Absorptionskoeffizienten der untersuchten H_2O - Linien. Die gemessenen relativen Diptiefen sind logarithmisch als Funktion der Modenlebensdauer aufgetragen. Die Absorptionskoeffizienten ergeben sich aus den Steigungen der resultierenden Geraden sowie der H_2O - Teilchenzahl n .

überein. Anstelle der dort benutzten Farbstoffmischung aus Rhodamin 6G und Rhodamin 101 wurde mit reinem Rhodamin 6G gearbeitet. Mit einem elektrooptischen Modulator zwischen Pumplaser und Farbstofflaser wurden im Farbstofflaser definierte Modenlebensdauern von 5 bis 15 μsec eingestellt. Die Tiefe der H_2O - Absorptionsdips wurde als Funktion der Modenlebensdauer gemessen und ist in Abbildung (11.1) dargestellt. Die dort angegebenen Absorptionskoeffizienten können direkt aus den Steigungen der beiden Geraden entnommen werden. Die absolute Wasserdampf - Konzentration in der Laboratmosphäre betrug im Fall der gezeigten Messung $(9.81 \pm 0.34) \text{ g/cm}^3$. Dies entspricht einer Teilchenzahl $n = (3.26 \pm 0.11) \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Das Verhältnis der gemessenen Absorptionskoeffizienten ist $\kappa(198)/\kappa(199) = 1.97 \pm 0.12$. Dieser Wert weicht um 12% von demjenigen Wert ab, der sich aus den Daten von Antipov *et al.* 1981 ergibt.

Mit Hilfe der so ermittelten Absorptionskoeffizienten lassen sich die Modenlebensdauern (also die Modenkorrelationszeiten) im frei laufenden, nicht modulierten Lasersystem bestimmen. Da sich die Absorptionskoeffizienten auf Grund von Schwankungen der Wasserdampf - Konzentration ändern, wurden für jede Meßreihe zur Bestimmung der Modenlebensdauern entsprechend korrigierte Absorptionskoeffizienten benutzt. Die Modenlebensdauern wurden in Abhängigkeit von der spektralen Dichte der ausgekoppelten Leistung des Farbstofflasers gemessen. Die Laserleistung wurde in kleinen Schritten von 10 mW variiert, um Einzelheiten in der Änderung der Modenlebensdauer nachweisen zu können. Die Modenlebensdauern wurden aus je fünf verschiedenen Messungen der relativen Absorptions - Diftiefen berechnet.

11.2 Bestimmung von fraktaler Dimensionalität und Kolmogorov - Entropie

Wie bereits in Abschnitt 8.2 erwähnt wurde, können fraktale Dimensionalität und Kolmogorov - Entropie eines chaotischen Systems anhand der Korrelation von gemessenen Werten einer Zeitserie abgeschätzt werden (Grassberger und Procaccia 1983a,b). Hierzu ist weder die Kenntnis der Dimension n des Phasenraums noch die Messung aller n Variablen $X_k(t) (k = 0, \dots, n - 1)$ des Systems notwen-

dig. Es genügt vielmehr die Messung einer einzigen Variablen $X_0(t)$, da sie die Information über alle anderen $(n - 1)$ Variablen durch ihre Ableitungen $\frac{dX_0^{(k)}(t)}{dt}$ nach der Zeit enthält (Packard et al. 1980). Das Verfahren wird dadurch analytisch praktikabel, daß man anstelle von $X_0(t)$ und seinen zeitlichen Ableitungen aus der Meßreihe $(n - 1)$ Datensätze konstruiert, deren Variablen gegenüber dem gemessenen Originaldatensatz $X_0(t)$ jeweils um ein Zeitintervall $k \cdot \Delta t$ verschoben sind. Die so erhaltenen Datensätze $X_0(t), \dots, X_0(t + (n - 1)\Delta t)$ definieren einen n - dimensionalen Phasenraum, sofern sie linear unabhängige Variablen enthalten (Takens 1981). Es ist also wichtig, Δt so zu wählen, daß es nicht ein Vielfaches einer im gemessenen Datensatz auftretenden Periode ist. Zweckmäßigerweise soll Δt in der Größenordnung der im System dominierenden Zeitskala liegen.

Unter den genannten Voraussetzungen erhält man aus der beschriebenen Methode folgenden Datensatz:

$$\begin{array}{ccc} X_0(t_1) & \dots & X_0(t_N) \\ X_0(t_1 + \Delta t) & \dots & X_0(t_N + \Delta t) \\ : & & : \\ X_0(t_1 + (n - 1)\Delta t) & \dots & X_0(t_N + (n - 1)\Delta t) \end{array}$$

Hierbei ist N die Anzahl von Meßwerten im Originaldatensatz $X_0(t)$. In vektorieller Schreibweise

$$\vec{X}_i = (X_0(t_i), \dots, X_0(t_i + (n - 1)\Delta t)) \quad (11.1)$$

läßt sich der gesamte Datensatz darstellen als:

$$\vec{X}_1, \dots, \vec{X}_N \quad (11.2)$$

Man wählt nun jeweils einen Punkt $\vec{X}_j$ aus (11.2) und untersucht die Abstände $|\vec{X}_i - \vec{X}_j|$ aller anderen Punkte $\vec{X}_i$ zu $\vec{X}_j$. Auf diese Weise kann man alle Punktepaare zählen, die enger benachbart sind als ein vorgegebener Abstand r . Die auf die Gesamtzahl aller Punkte normierte Anzahl dieser Punktepaare ist:

$$C(r) = \frac{1}{N^2} \sum_{i,j=1}^N \Theta(r - |\vec{X}_i - \vec{X}_j|) \quad (11.3)$$

Dabei ist $\Theta(x)$ die Heaviside - Funktion: $\Theta(x) = 0$ für $x \leq 0$ und $\Theta(x) = 1$ für $x > 0$. $C(r)$ gibt an, wie stark sich die verschiedenen Datenpunkte gegenseitig

beeinflussen. Es kann daher als räumliche Korrelationsfunktion des Attraktors im Phasenraum betrachtet werden.

Ein wesentliches Resultat von Grassberger und Procaccia 1983a ist, daß bei nicht zu großen Abständen r für die normierte Anzahl $C(r)$ von Punktepaaaren mit Abstand kleiner als r gilt:

$$C(r) \sim r^\nu, \quad (11.4)$$

wobei der Korrelationsexponent ν näherungsweise gleich der fraktalen Dimensionalität D des Attraktors ist. Zugleich gibt ν eine untere Grenze für D an. Im Grenzfall regulärer Attraktoren liefert ν die topologische (ganzzahlige) Dimension des Attraktors.

In der praktischen Anwendung wird $C(r)$ bezüglich mehrerer aufeinanderfolgender Dimensionen n des gemäß (11.2) konstruierten Phasenraumes berechnet. Aus Gleichung (11.4) ergibt sich zu jeder Dimension n ein Exponent ν als Steigung von $\ln C(r)$ in Abhängigkeit von $\ln r$. Diese Steigung konvergiert gegen die gesuchte fraktale Dimensionalität D . Die höchste sinnvolle Dimension für das Verfahren ergibt sich aus der zur Verfügung stehenden Anzahl von gemessenen Datenpunkten. Wählt man zu hohe Dimensionen, so werden die Datenpunkte so stark verdünnt, daß zu wenig Punkte im vorgegebenen Abstand r liegen. In diesem Fall geht die Konvergenz von ν verloren. Es ist klar, daß für große r sämtliche Punktepaaare innerhalb von r liegen. Daher muß für große r der Wert von $C(r) \rightarrow 1$ gehen.

Außer der fraktalen Dimensionalität D läßt sich aus der Korrelationsfunktion $C(r)$ die Kolmogorov - Entropie K des Attraktors näherungsweise bestimmen. Dies wurde im einzelnen von Grassberger und Procaccia 1983b gezeigt. Im Fall chaotischer Attraktoren konvergiert nicht nur die Steigung $\ln C(r)/\ln r$ für wachsende Dimension n , sondern auch der Abstand der Geraden bezüglich je zweier aufeinanderfolgender n nähert sich einem Grenzwert. Durch diesen Abstand kann die Kolmogorov - Entropie K des Attraktors abgeschätzt werden. Sie ergibt sich aus:

$$K \simeq \lim_{n \rightarrow \infty, r \rightarrow 0} \frac{1}{\tau} \cdot \ln \frac{C_n(r)}{C_{n+1}(r)} \quad (11.5)$$

Dabei ist τ der zeitliche Abstand zweier aufeinanderfolgender Meßpunkte im Originaldatensatz $X_0(t)$, aus dem durch Verschiebung um $k \cdot \Delta t$ die übrigen verwendeten Datensätze konstruiert wurden.

Im Fall regulärer Attraktoren geht $\frac{C_n(r)}{C_{n+1}(r)} \rightarrow 1$ ($K = 0$); bei rein stochastischen Prozessen geht $K \rightarrow \infty$. Wenn K endlich und $K > 0$ ist, so ist damit eine *hinreichende* Bedingung für die Existenz eines chaotischen Attraktors erfüllt. In gleicher Weise ist eine fraktale (nicht - ganzzahlige) Dimensionalität ein eindeutiges Kriterium für chaotisches Verhalten.

Zur experimentellen Bestimmung der fraktalen Dimensionalität und der Kolmogorov - Entropie ist es notwendig, die zeitliche Entwicklung einer Variablen des Systems zu messen. Die so erhaltene Zeitfunktion kann dann als Originaldatensatz $X_0(t)$ verwendet werden. Im Fall eines Multimode - Lasers ist die am leichtesten zugängliche Variable des Systems die Modenintensität.

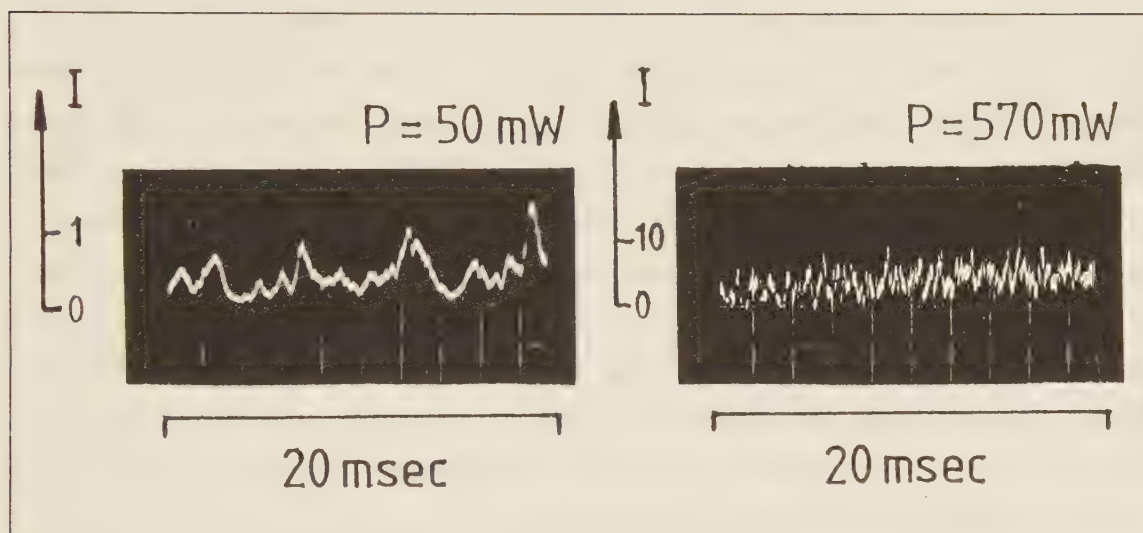


Abbildung 11.2: Zeitliche Entwicklung der Modenintensität I über 20 msec für zwei verschiedene Laserausgangsleistungen P , gemittelt über ca. 35 longitudinale Lasermode. Bei niedriger Leistung fluktuiert die Modenintensität deutlich langsamer als bei hoher Leistung. Dieses Resultat zeigt in anschaulicher Weise die Zunahme der Modenlebensdauer bei abnehmender Laserleistung.

Die Messung der für die Analyse erforderlichen Zeitserien wurde bei 593.21 nm und 593.28 nm in den Absorptionsdips der dort befindlichen H_2O - Linien durchgeführt. Zusätzlich wurden Zeitserien aus dem Emissionsmaximum zwischen den beiden Dips analysiert. Mit dem verfügbaren Spektrographen ist bei einer Wellenlänge von 590 nm eine Auflösung von etwa 0.01 nm erreichbar. In diesem

Wellenlängenintervall befinden sich ungefähr 35 (von einigen 1000 insgesamt emittierten) longitudinale Lasermode. Man erhält also als Signal einen Mittelwert über 35 Mode. Dieses Signal wird mit Hilfe eines Photomultipliers registriert und mit einer Auflösung von 512 Punkten elektronisch digitalisiert. Die so erhaltenen (und auf das Intervall $(0,1)$ normierten) Werte werden als die zur Analyse erforderliche Zeitserie $X_0(t)$ benutzt. Es zeigte sich, daß Gesamtzeiten von 20 msec (Auflösung $40 \mu\text{sec}$) für die Auswertung am zweckmäßigsten waren. Abbildung (11.2) zeigt zwei gemessene Zeitserien der Modenintensität über 20 msec bei niedriger und hoher spektraler Leistungsdichte. Die Anzahl von 512 Datenpunkten genügt für die Analyse in Phasenräumen von ausreichend hoher Dimension n , um D und K als Grenzwerte für große n ermitteln zu können.

Die numerische Analyse der digitalisierten Modenintensitäten nach den von Grassberger und Procaccia 1983a,b vorgeschlagenen Verfahren ergibt in doppelt - logarithmischer Darstellung eine Schar von n Kurven (siehe Abbildung (11.3)), wobei n die jeweilige Dimension des konstruierten Phasenraumes ist. Alle Kurven weisen deutlich einen linearen Bereich auf. In diesem Bereich wird der Korrelationskoeffizient ν gemäß Gleichung (11.4) als Steigung der Geraden ermittelt. Abbildung (11.3) stellt $\ln C(r)$ in Abhängigkeit von $\ln r$ für verschiedene Dimensionen n bezüglich eines analysierten Datensatzes dar. Aus Abbildung (11.4) wird klar erkennbar, daß die Steigung ν bei wachsendem n gegen einen Grenzwert strebt. Dieser Grenzwert ist näherungsweise gleich der fraktalen Dimensionalität D des Attraktors, der die zeitliche Entwicklung des Systems im Phasenraum darstellt. Abbildung (11.5) zeigt, wie sich die Kolmogorov - Entropie aus Gleichung (11.5) ebenfalls asymptotisch bestimmen läßt.

Im Rahmen einer umfangreichen Vorauswertung wurde zunächst untersucht, inwieweit die erhaltenen fraktalen Dimensionalitäten D und Kolmogorov - Entropien K von verschiedenen experimentellen und numerischen Randbedingungen abhängen.

1. Abhängigkeit von der Anzahl der gemittelten Mode. Für verschiedene Modenanzahlen (verschiedene Spaltbreiten vor dem Multiplier) war keine signifikante Änderung von D und K bei niedrigen und hohen spektralen Leistungsdichten festzustellen. Aus diesem Grund wurde angenommen, daß

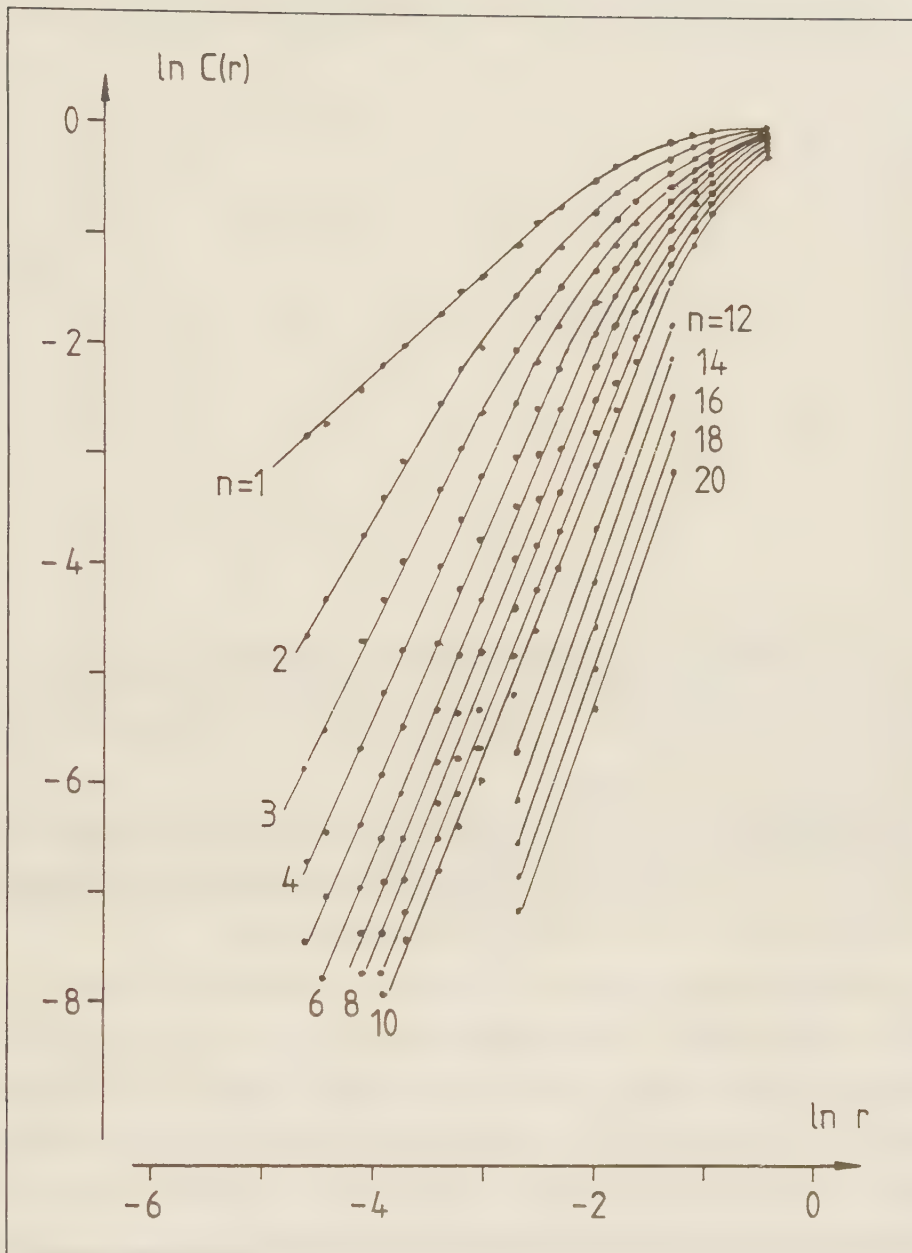


Abbildung 11.3: Nach Gleichung (11.3) ermittelte Korrelationsfunktion $C(r)$ eines Datensatzes für hohe spektrale Leistungsdichte. Kurvenparameter ist die Dimension n des konstruierten Phasenraumes. Für die einzelnen Kurven ist $\nu = \ln C(r) / \ln r$ über mehrere Größenordnungen von r konstant.

die maximale Auflösung (35 Moden) für die Konstruktion des Gesamtdatensatzes $\vec{X}_1, \dots, \vec{X}_N$ ausreichend ist. Im jeweils erhaltenen Phasenraum sollten sich unterschiedliche Korrelationen $C(r)$ ergeben, wenn eine höhere Auflösung (im Idealfall eine Mode) erforderlich wäre.

2. Abhängigkeit von der Zeitverschiebung Δt bei der Konstruktion des Ge-

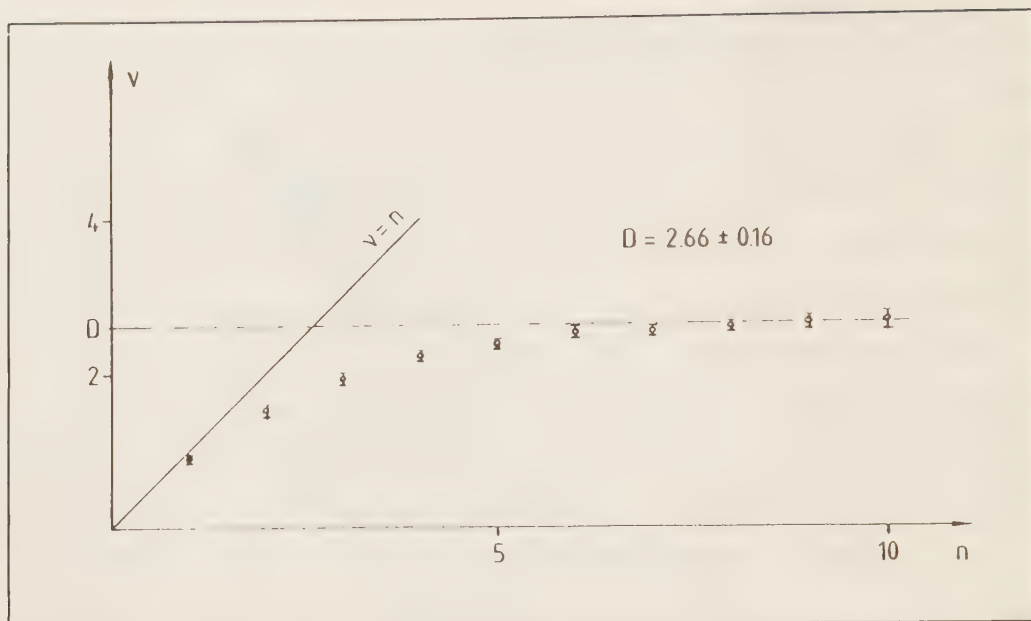


Abbildung 11.4: Ermittlung der fraktalen Dimensionalität D nach Gleichung (11.4). Die Steigung ν der Geraden aus Abbildung (11.3) ist als Funktion der Phasenraumdimension n aufgetragen. Für wachsendes n geht ν gegen den Grenzwert D . Nicht - ganzzahliges D ist ein hinreichendes Kriterium für chaotisches Verhalten. Im Fall stochastischen Verhaltens wäre $\nu = n$.

samtdatensatzes. Auch hier zeigten sich keine signifikanten Abweichungen für $10 \mu\text{sec} < \Delta t < 100 \mu\text{sec}$. Die gewählten Werte lieferten also linear unabhängige $\vec{X}_i$ zur Konstruktion des Phasenraumes.

3. Reproduzierbarkeit von D und K bezüglich verschiedener Zeitserien unter gleichen Bedingungen. Bei konstanter Modenanzahl und spektraler Position im Laserspektrum ergaben sich für nacheinander aufgenommene Zeitserien Schwankungen von D und K , die den statistischen Fehler einer Einzelmessung um das Zwei- bis Dreifache überstiegen. Es erwies sich daher als notwendig, jeweils Mittelwerte über mehrere Einzelmessungen zu bilden.
4. Abhängigkeit der Meßergebnisse bezüglich Emissionsminima (Absorptionsdips) oder -maxima. Bei hohen spektralen Leistungsdichten wurden keine signifikanten Unterschiede festgestellt. Im Fall geringer spektraler Leistungsdichten stellte sich jedoch heraus, daß die fraktale Dimensionalität im Absorptionsdip deutlich größer ist als unter absorptionsfreien Bedingungen (Diskussion siehe Abschnitt 12). Zumindest bei kleinen spektralen Leistungsdichten ist es somit erforderlich, bei der Messung zwischen Absorptionsdip und absorptionsfreiem Emissionsspektrum zu unterscheiden.

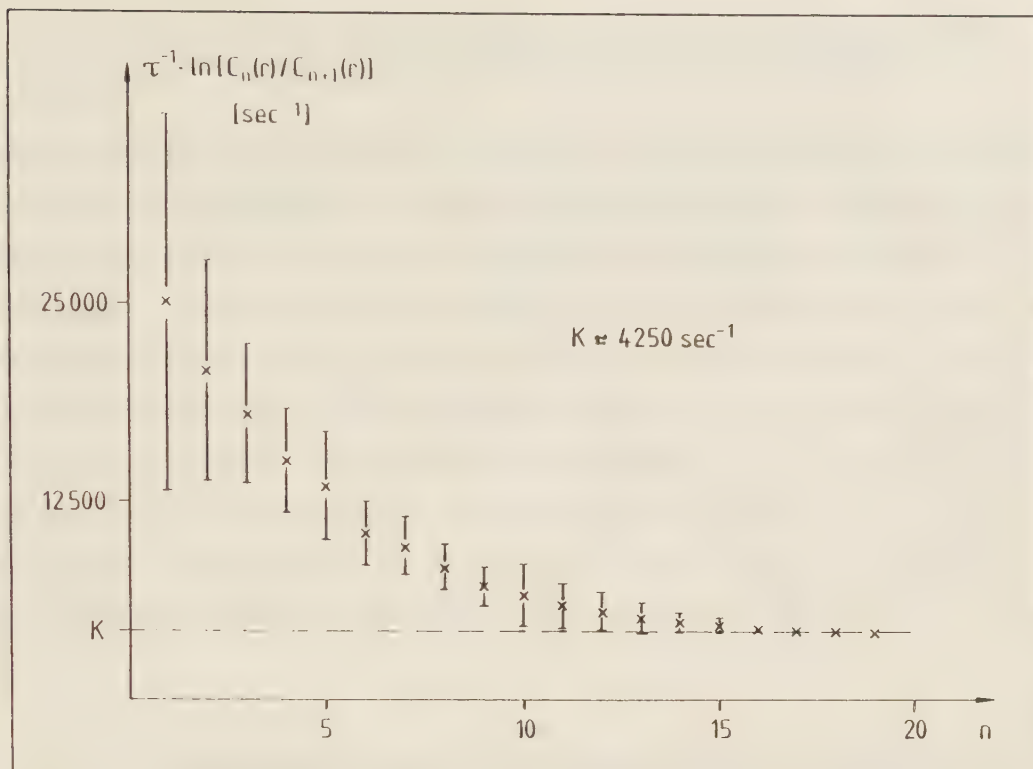


Abbildung 11.5: Ermittlung der Kolmogorov - Entropie nach Gleichung (11.5). Für sämtliche Werte des linearen Bereiches, die für Abbildung (11.4) verwendet wurden, ist $\ln\{C_n(r)/C_{n+1}(r)\}/\tau$ als Funktion von n aufgetragen. Der Grenzwert für große n liefert für den analysierten Datensatz $K \simeq 4250 \text{ sec}^{-1}$. Da $K > 0$ und K endlich ist, liegt ein weiteres hinreichendes Kriterium für das chaotische Verhalten des Systems vor.

12. Dynamik von Multimode - Lasern

Die Modenkorrrelationszeiten (= Modenlebensdauern) zeigen in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte zwei grundsätzlich unterschiedliche Verhaltensweisen. Sie können unabhängig von jeglichen Kriterien für chaotisches Verhalten bereits anhand der spektralen Leistungsdichte klassifiziert werden. Bei niedrigen spektralen Leistungsdichten ergeben sich als "Feinstruktur" in der Modenkorrrelationszeit diskontinuierliche Sprünge (Abschnitt 12.1). Bei hohen spektralen Leistungsdichten erreicht die Modenkorrrelationszeit einen konstanten Wert (Abschnitt 12.2). Diese Resultate ermöglichen eine Erweiterung des rein stochastischen theoretischen Ansatzes aus Abschnitt 2.3. In den folgenden Abschnitten 12.1 und 12.2 werden die detaillierten Ergebnisse und ihre Interpretation vorgestellt.

12.1 Instabilitäten bei kleinen spektralen Leistungsdichten

Die Modenkorrrelationszeiten sind als Funktion niedriger spektraler Leistungsdichten in Abbildung (12.1) dargestellt. Sie wurden als Mittelwert aus beiden untersuchten H_2O - Absorptionslinien ermittelt (vgl. Abschnitt 11.1). Die Modenkorrrelationszeiten bezüglich beider Absorptionslinien stimmen innerhalb ihrer statistischen Fehler überein.

Die angegebenen spektralen Leistungsdichten wurden als Verhältnis der Farbstofflaser - Ausgangsleistung zur spektralen Breite der Laseremission berechnet. Die spektrale Leistungsdichte im Resonator ergibt sich daraus durch Berücksichtigung der Transmission des Auskoppelspiegels.

In Abbildung (12.1) sind deutlich zwei spektrale Leistungsdichten erkennbar, an denen das Verhalten der Modenkorrrelationszeit stark von der kontinuierlichen Abnahme abweicht, die von der Theorie gemäß Abschnitt 2.3 vorhergesagt wird. Bei etwa $14.5 \text{ mW}/\text{\AA}$ gehen die Modenkorrrelationszeiten drastisch von 300 auf weniger als $200 \mu\text{sec}$ zurück. Bei weiterer Erhöhung der spektralen Leistungsdichte steigen die Modenkorrrelationszeiten zunächst auf etwa $240 \mu\text{sec}$ bei $30 \text{ mW}/\text{\AA}$ an. Bei $36 \text{ mW}/\text{\AA}$ tritt erneut ein diskontinuierlicher Rückgang der Modenkorrrelationszeiten von 240 auf $180 \mu\text{sec}$ ein.

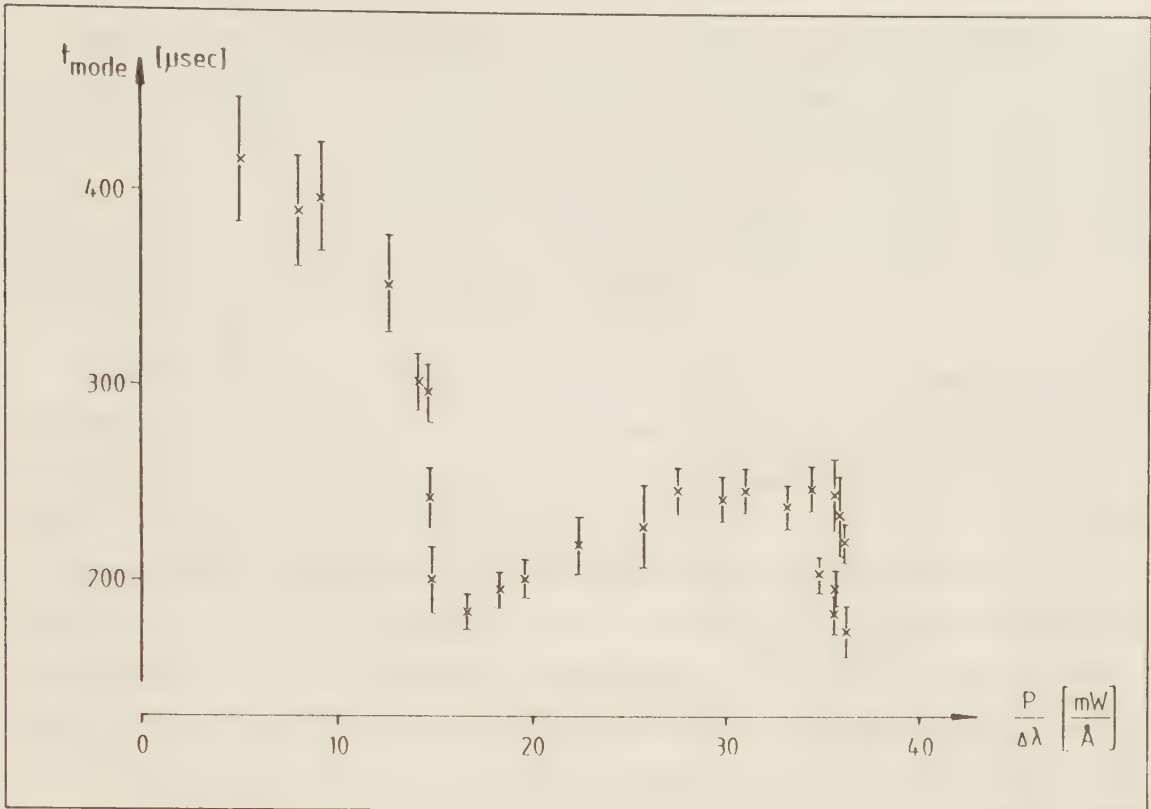


Abbildung 12.1: Gemessene Modenkorrelationszeiten t_{mode} im Bereich geringer spektraler Leistungsdichten $P/\Delta\lambda$. Die Fehler sind auf den statistischen Mittelwert aus beiden untersuchten Absorptionslinien bezogen. Die Modenkorrelationszeiten zeigen diskontinuierliche Sprünge bei 14.5 mW/Å und 36 mW/Å.

Die kritischen Werte von $P/\Delta\lambda$, an denen sich das Verhalten des Systems diskontinuierlich ändert, hängen von der jeweiligen Feinjustierung der optischen Laserkomponenten ab. Die erste Diskontinuität in Abbildung (12.1) tritt zum Beispiel in verschiedenen Meßserien zwischen 12 und 17 mW/Å auf. $(P/\Delta\lambda)_{\text{crit}}$ stellt sich somit als nicht exakt quantitativ reproduzierbar heraus.

Für die Interpretation ist es zunächst wesentlich, sich die allgemeine Bedeutung der Laserparameter gemäß Abschnitt 9 zu vergegenwärtigen. Die Pumpleistung P_{pump} ist der Kontrollparameter des Systems, während die Modenamplituden einen Ordnungsparameter repräsentieren. Als Maß für diesen Ordnungsparameter dient daher die spektrale Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$.

In Abbildung (12.2) ist das unterschiedliche Verhalten von Gesamtausgangsleistung P und spektraler Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$ als Funktion von P_{pump} aufgetragen. Das obere Diagramm zeigt die Gesamtausgangsleistung, die nahezu linear mit

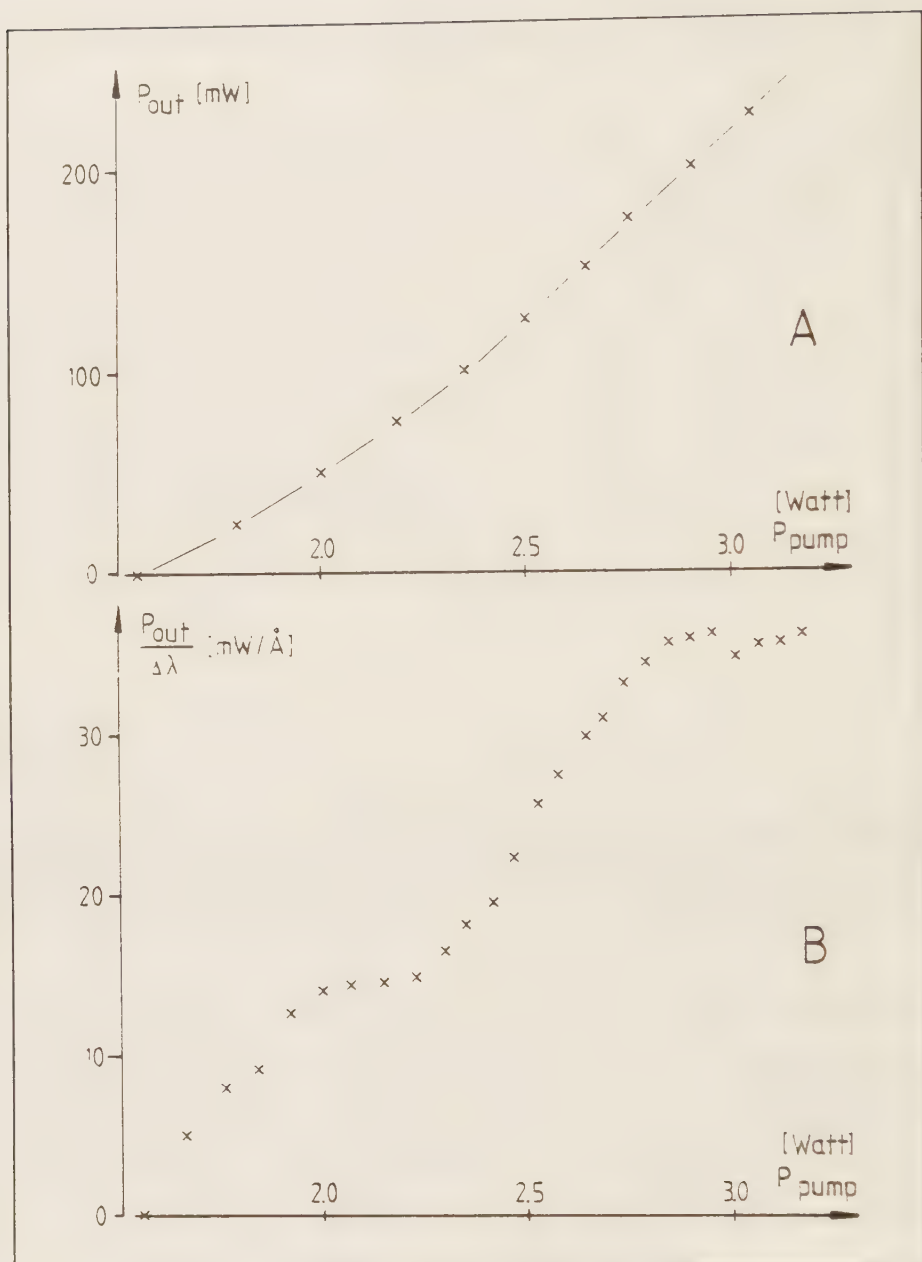


Abbildung 12.2: a) Gesamtausgangsleistung P als Funktion der Pumpleistung P_{pump} . Es ergibt sich ein nahezu linearer Zusammenhang, der gleichbedeutend mit einer konstanten Gesamt“efficiency” des Lasersystems ist. b) Spektrale Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$ als Funktion der Pumpleistung P_{pump} . In bestimmten Bereichen der Pumpleistung ändert sich die spektrale Leistungsdichte nicht. Bei den betreffenden spektralen Leistungsdichten treten die beobachteten Diskontinuitäten der Modenkorrelationszeiten auf.

der Pumpleistung zusammenhängt. Die Steigung der Geraden wird als “efficiency” des Systems bezeichnet. Im unteren Diagramm ist die spektrale Leistungsdichte als Ordnungsparameter des Systems gegenüber der Pumpleistung dargestellt. Die

erhaltene Kurve weist ausgeprägte Stufen auf. Sie entstehen dadurch, daß in bestimmten Bereichen von P_{pump} die Erhöhung der Gesamtausgangsleistung P durch eine Zunahme der spektralen Breite $\Delta\lambda$ verursacht wird. Dies führt zu einem ungefähr konstanten Verhältnis $P/\Delta\lambda$. In den Bereichen von P_{pump} , in denen eine Erhöhung der Pumpleistung die spektrale Breite weitgehend unbeeinflusst läßt, steigt $P/\Delta\lambda$, da die Leistung pro Mode tatsächlich zunimmt.

Offensichtlich gibt es Bereiche des Kontrollparameters P_{pump} , in denen die Leistung pro Mode wächst, während in anderen Bereichen die spektrale Breite $\Delta\lambda$ zunimmt. In diesem Sinne kann die spektrale Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$ als ein Ordnungsparameter verstanden werden, der seinerseits als weiteren Ordnungsparameter die spektrale Breite $\Delta\lambda$ enthält. In bestimmten Bereichen der Pumpleistung dominiert $P/\Delta\lambda$ das Verhalten des Systems, während in anderen Bereichen (in Abbildung (12.2) z.B. bei Pumpleistungen zwischen 2.0 und 2.25 Watt) eine Erhöhung der Pumpleistung die spektrale Breite wachsen läßt. Ein derartiger Wechsel des Ordnungsparameters ist dadurch erklärbar, daß bei einem kritischen Kontrollparameter eine vorher adiabatisch eliminierte Größe im System "die Oberhand gewinnt" und zur adiabatischen Eliminierung der vorher dominierenden Größe führt. In thermodynamischer Terminologie handelt es sich hierbei um einen *funktionalen Phasenübergang* im Gegensatz zu einem strukturellen Phasenübergang, bei dem der Ordnungsparameter erhalten bleibt.

Vergleicht man die spektralen Leistungsdichten, bei denen in Abbildung (12.2) die charakteristischen Stufen auftreten, mit den in Abbildung (12.1) angegebenen spektralen Leistungsdichten, so erkennt man die Korrelation der Stufen mit den Diskontinuitäten der Modenkorrelationszeiten. In den Bereichen der Pumpleistung, in denen $\Delta\lambda$ wächst, tritt der beschriebene drastische Rückgang der Modenkorrelationszeiten auf.

Eine anschauliche Beschreibung dieser Phänomene ergibt sich im Zusammenhang mit dem Modell der selbstbezüglichen Eigenschaften eines Multimode - Lasersystems aus Abschnitt 10.2. Die ineinandergeschachtelten Kontrollprozesse in Abbildung (10.1b) unterscheiden sich wesentlich dadurch, daß das Durchlaufen der inneren Rückkoppelungsschleife lediglich bei bestimmten diskreten Werten $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ initiiert wird. Dieses Modell basiert auf der Vorstellung von Gain

- Inhomogenitäten, die durch das Verhältnis der Modenanzahl N zur Anzahl M von unabhängig voneinander oszillierenden Modenpaketen quantifiziert werden können. Im Gegensatz zur inneren Schleife liefert die äußere, übergeordnete Rückkoppelung für *jede* Laserleistung P einen Gleichgewichtszustand zwischen $P/\Delta\lambda$ und der Modenkorrelationszeit t_{mode} .

Die Diskontinuitäten der Modenkorrelationszeiten treten in dieser Betrachtungsweise dort auf, wo kritische Werte $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ erreicht werden, die zur Initialisierung der inneren Rückkoppelungsschleife führen. Bei $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ ändert sich der Inhomogenitätsgrad im Gain - Medium. Diese Änderung von N/M führt zu einer Modifizierung der nichtlinearen Kopplung der einzelnen Moden untereinander. Hierdurch wird zugleich die *funktionale* Änderung im System im oben angesprochenen Sinn anschaulich klar. Die innere Rückkoppelungsschleife bewirkt eine Änderung der spektralen Breite $\Delta\lambda$ der Laseremission. Im Bereich $(P/\Delta\lambda) > (P/\Delta\lambda)_{crit}$ stellt sich unter dem Einfluß des geänderten Inhomogenitätsgrades im Gain - Medium ein *neues* Gleichgewicht zwischen spektraler Leistungsdichte und Modenkorrelationszeit ein.

Der Einbruch der Modenkorrelationszeit bei $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ selbst ist damit jedoch noch ungeklärt. Das in Abschnitt 2.3 beschriebene stochastische Modell für die Modenkorrelationszeiten ist zur Erklärung der drastischen Verringerung unzulänglich, da es eine stetige Abnahme der Modenkorrelationszeit mit zunehmender spektrale Leistungsdichte vorhersagt. Aus diesem Grund werden im folgenden die Konzepte der verallgemeinerten Multistabilität und chaotischen Verhaltens diskutiert, die in Abschnitt 8 eingeführt wurden. Sie lassen gemäß Abschnitt 10.2 eine Interpretation der Modenkorrelationszeiten als mittlere "first passage" - Zeiten t_{fp} auf Grund von stochastischen Fluktuationen oder als Korrelationszeiten τ_{corr} in chaotischen Prozessen zu.

Zunächst wurde überprüft, ob überhaupt chaotische Beiträge zum Verhalten des Systems vorliegen. Hierzu wurden bei verschiedenen spektralen Leistungsdichten die fraktale Dimensionalität D des Systems und seine Kolmogorov - Entropie K nach Abschnitt 11.2 bestimmt. In sämtlichen Bereichen von $P/\Delta\lambda$ ergaben sich sowohl nicht - ganzzahlige D als auch positive, endliche K . (Als Beispiele siehe Abbildungen (11.4) und (11.5).) Jedes dieser Resultate stellt bereits für

sich ein eindeutiges Kriterium für chaotisches Verhalten dar. Damit sind die in Abschnitt 10.1 beschriebenen Möglichkeiten eines einzelnen regulären Attraktors bzw. fluktuationsinduzierter Übergänge zwischen mehreren koexistierenden regulären Attraktoren zur Beschreibung des Systems ausgeschlossen. Im ersten Fall wäre $K = 0$ und D ganzzahlig; im zweiten Fall wären die Kriterien für einen rein stochastischen Prozeß zu erfüllen: $K \rightarrow \infty$ und $D = d$ (d = Dimension des Phasenraumes).

Im Bereich zwischen zwei kritischen Werten von $P/\Delta\lambda$ ist K innerhalb seines Fehlers konstant. Der chaotische Anteil am Verhalten des Systems ändert sich daher nicht meßbar. Da K^{-1} ein Maß für die Korrelationszeit τ_{corr} in chaotischen Attraktoren darstellt (Procaccia 1985), kann τ_{corr} für die kontinuierliche Abnahme der Modenkorrelationszeiten bei wachsender spektraler Leistungsdichte nicht verantwortlich sein. Stochastische Einflüsse sind zur Erklärung dieser Abnahme notwendig. Diese Folgerung ist konsistent mit der in Abschnitt 2.3 gegebenen Beschreibung der Abnahme der Modenkorrelationszeiten bei zunehmender spektraler Leistungsdichte. Die Existenz stochastischer Einflüsse bedeutet gleichzeitig, daß sich fluktuationsinduzierte Übergänge zwischen koexistierenden chaotischen Attraktoren des Systems bemerkbar machen. Dies kann nur dann der Fall sein, wenn die Korrelationszeit $\tau_{corr} > t_{fp}$ ist, so daß innerhalb der Korrelationszeit in einem chaotischen Attraktor das System in einen anderen Attraktor wechseln kann. In einer solchen Situation ergibt sich als Modenkorrelationszeit t_{fp} (siehe Fall (4a) in Abschnitt 10.1). Zu sehr kleinen spektralen Leistungsdichten nimmt der Einfluß von Fluktuationen ab, und das System nähert sich dem Fall (4c): $t_{fp} \simeq \tau_{corr}$.

Die fraktale Dimensionalität D wurde bei verschiedenen spektralen Leistungsdichten jeweils im Zentrum einer Absorptionslinie (D_{dip}) und im Maximum der Laseremission (D_{max}) bestimmt. Dabei zeigte sich für geringe spektrale Leistungsdichten (zwischen 11 und 18 mW/Å):

$$D_{dip} \simeq D_{max} + 1 \quad (12.1)$$

Das bedeutet, daß die Anzahl der Freiheitsgrade des Systems durch den Einfluß des Absorbers um Eins erhöht wird. Um das Verhalten des Systems zu beschreiben, muß der Absorber mitberücksichtigt werden.

Um die oben beschriebene Zunahme der Freiheitsgrade des Systems bei kritischen Leistungsdichten zu verifizieren, wurden die fraktale Dimensionalität D und die Kolmogorov - Entropie K in Abhängigkeit von der spektralen Leistungsdichte bestimmt. Dabei wurde ein Bereich von $P/\Delta\lambda$ ausgewählt, der eine diskontinuierliche Änderung der Modenkorrelationszeit enthält. Die betreffende kritische Leistungsdichte betrug $(P/\Delta\lambda)_{crit} = (13.1 \pm 0.5) \text{ mW}/\text{\AA}$.

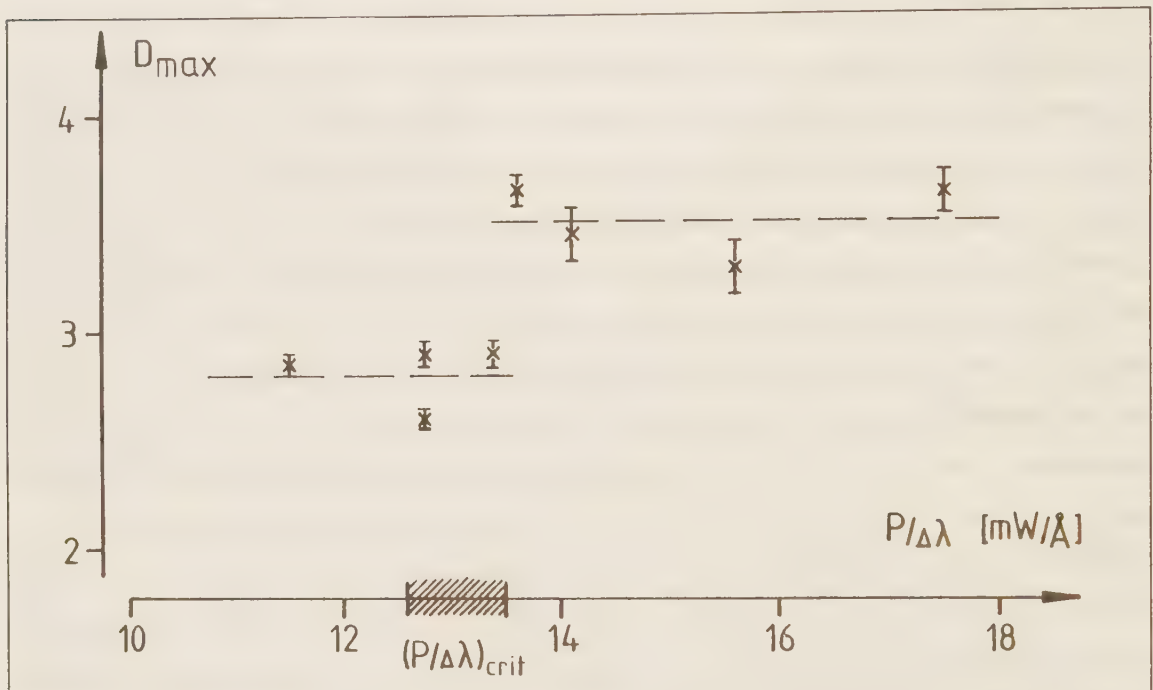


Abbildung 12.3: Fraktale Dimensionalität D_{max} des Systems im Maximum der Laseremission in der Umgebung einer kritischen spektralen Leistungsdichte, bei der die Modenkorrelationszeit diskontinuierlich abnimmt. Die gestrichelten Linien bezeichnen den Mittelwert von D_{max} vor und nach Überschreiten von $(P/\Delta\lambda)_{crit}$.

Das Verhalten der fraktalen Dimensionalität D_{max} im Maximum der Laseremission (und damit nach Gleichung (12.1) auch im Absorptionsdip) zeigt Abbildung (12.3). Im Bereich geringer spektraler Leistungsdichten unter $13 \text{ mW}/\text{\AA}$ liegt die fraktale Dimensionalität D zwischen 2 und 3. Das System läßt sich demnach mit wenigen (mindestens drei) Freiheitsgraden modellieren. Dies bedeutet nach der oben gegebenen anschaulichen Interpretation, daß nur wenige Modenpakete unabhängig voneinander oszillieren. Damit ist ein hoher Inhomogenitätsgrad (N/M) im Gain - Medium verbunden. Dieses Resultat ist konsistent mit der Annahme von Westling et al. 1983, nach der bei kleinen spektralen Leistungsdichten

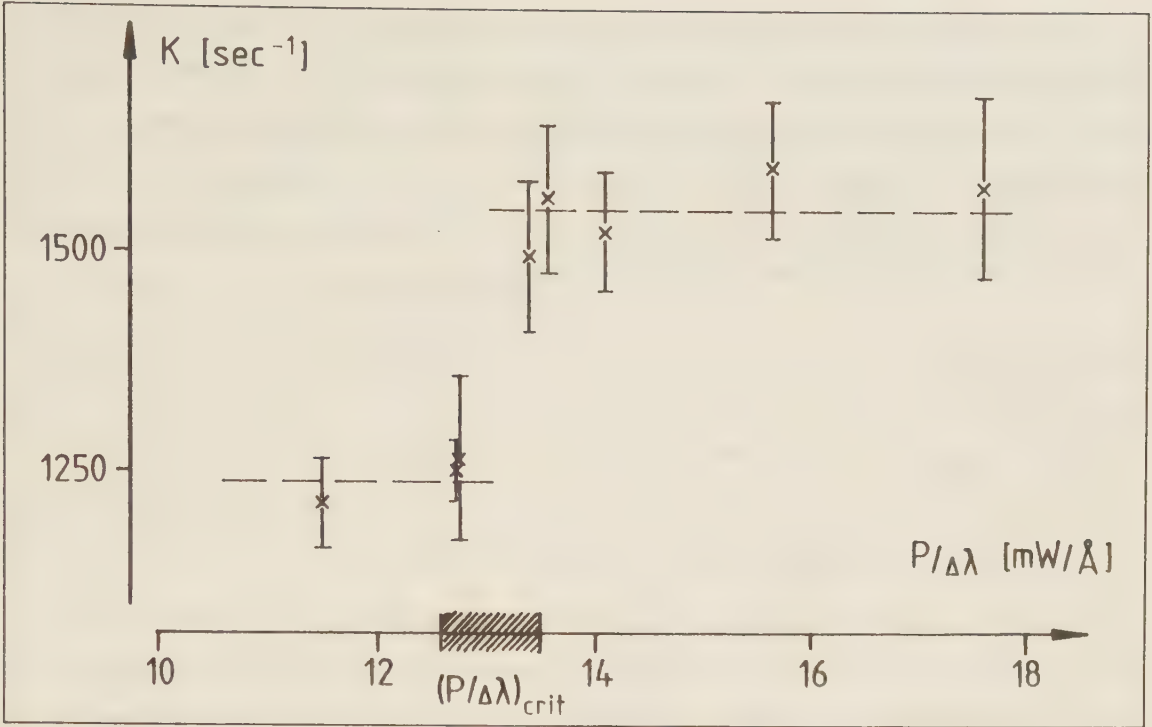


Abbildung 12.4: Kolmogorov - Entropie K des Systems im Maximum der Laseremission bezüglich der gleichen spektralen Leistungsdichten wie in Abbildung (12.3). Die gestrichelten Linien bezeichnen den Mittelwert von K vor und nach Überschreiten von $(P/\Delta\lambda)_{crit}$.

beträchtliche Gain - Inhomogenitäten in Multimode - Farbstofflasern auftreten.

Bei $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ ist deutlich zu erkennen, daß D_{max} zunimmt. Während unterhalb der kritischen Leistungsdichte $2 < D_{max} < 3$ ist, erhöht sich bei Überschreiten von $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ die fraktale Dimensionalität und liegt dann zwischen 3 und 4. Dort, wo die Modenkorrelationszeit sich diskontinuierlich ändert, bekommt das System somit einen zusätzlichen Freiheitsgrad. Dieser zusätzliche Freiheitsgrad entsteht dadurch, daß sich die Anzahl unabhängig voneinander oszillierender Modenpakete um Eins erhöht.

In Abbildung (12.4) ist bezüglich der gleichen Meßserie wie in Abbildung (12.3) die erhaltene Kolmogorov - Entropie des Systems aufgetragen (gemessen im Maximum der Laseremission; Messungen im Zentrum einer Absorptionslinie liefern durchweg etwas größere Werte für K). Auch hier zeigt sich bei $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ deutlich ein Sprung. Der Wert von K erhöht sich von 1240 sec^{-1} auf 1550 sec^{-1} . Die damit verbundenen Korrelationszeiten sind $\tau_{corr} = 810 \mu\text{sec}$ bzw. für höhere spektrale Leistungsdichten $\tau_{corr} = 640 \mu\text{sec}$.

Die durchgeführte Analyse zeigt, daß das Lasersystem bei kleinen spektralen Leistungsdichten von relativ geringer Dimensionalität ist. Unter dieser Voraussetzung ist ein Vergleich mit numerischen Rechnungen zu eindimensionalen iterativen Abbildungen interessant. Eine derartige numerische Analyse wurde von Arecchi *et al.* 1984 durchgeführt. Sie ergab eine lineare Beziehung zwischen $\log t_{fp}$ und dem Logarithmus der Rauschamplitude im System.

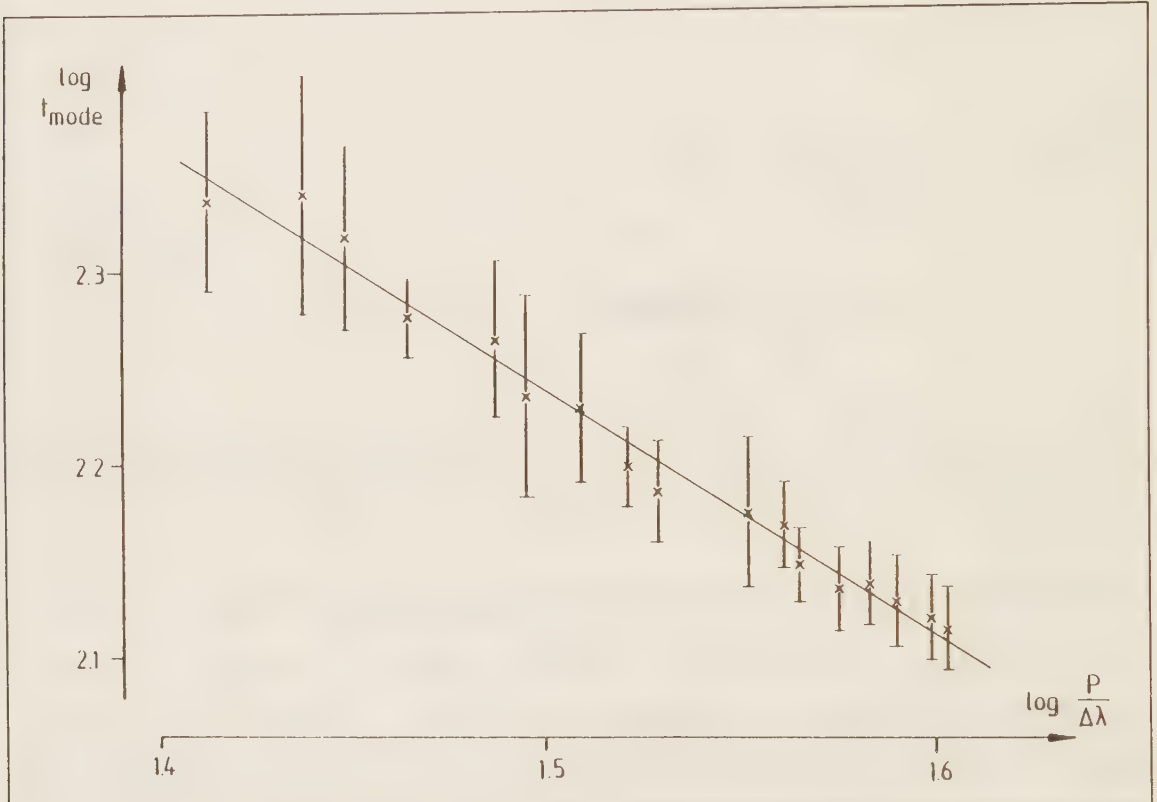


Abbildung 12.5: Doppelt - logarithmische Darstellung der gemessenen Modenkorrrelationszeiten als Funktion der spektralen Leistungsdichte $P/\Delta\lambda$. Der ausgewählte Bereich von $P/\Delta\lambda$ ist frei von Diskontinuitäten der Modenkorrrelationszeit. Eine lineare Regression der gemessenen Werte liefert einen Korrelationskoeffizienten von -0.991.

Um dieses numerische Ergebnis mit experimentellen Daten des untersuchten niedrig - dimensionalen Multimode - Lasersystems zu vergleichen, wurde die Modenkorrrelationszeit doppelt - logarithmisch gegen die spektrale Leistungsdichte aufgetragen. Abbildung (12.5) zeigt die erhaltene Abhängigkeit in einem Bereich, in dem die Modenkorrrelationszeit qualitativ der Vorhersage des rein stochastischen Modells folgt. Betrachtet man in erster Näherung die Fluktuationsamplitude als proportional zur spektralen Leistungsdichte (siehe Gleichung (2.25)), so ergibt

sich eine geradezu überraschend gute Übereinstimmung mit dem numerisch berechneten Verhalten der mittleren “first passage” - Zeiten unter stochastischen Einflüssen. Die experimentellen Daten weisen eine nahezu perfekte Linearität auf (Korrelationskoeffizient: -0.991). Sie bestätigen die stochastische Interpretation der Modenkorrelationszeiten in den Bereichen, in denen t_{mode} stetig mit wachsender spektraler Leistungsdichte abnimmt.

Die Diskontinuitäten bei kritischen Werten $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ sind als dynamische Instabilitäten des Multimode - Lasersystems interpretierbar. Der Symmetriebruch, der für derartige Instabilitäten fern vom thermodynamischen Gleichgewicht charakteristisch ist, äußert sich durch die Änderung der Gain - Inhomogenitäten (N/M) . Er modifiziert zugleich die Anzahl von Freiheitsgraden des Systems.

Das Verhalten der Modenkorrelationszeiten zusammen mit den fraktalen Dimensionalitäten D und der Kolmogorov - Entropie K läßt für die Umgebung von $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ den Schluß zu, daß das System sich unter- und oberhalb von $(P/\Delta\lambda)_{crit}$ in verschiedenen dissipativen Strukturen aufhält, die beide chaotisches Verhalten zeigen. Der Übergang zwischen diesen beiden Strukturen vollzieht sich nicht direkt als struktureller Phasenübergang, wie er z.B. von Aizawa und Uezu 1982 anhand eines dreidimensionalen getriebenen Lorenz - Systems numerisch analysiert wurde (“chaos - chaos phase transition”). Vielmehr wechselt das System zwischen den beiden chaotischen Strukturen den Ordnungsparameter und schafft sich auf diese Weise selbst die Voraussetzung, in die neue Struktur überzugehen.

Generell nehmen in der Nähe von dynamischen Instabilitäten die Korrelationslängen der systemimmanenten Fluktuationen stark zu und werden genau am jeweiligen kritischen Punkt unendlich groß. Damit wächst natürlich in entsprechender Weise die Korrelationszeit der Fluktuationen t_{fluc} . Typisch für thermodynamische Phasenübergänge zweiter Ordnung ist z.B. ein Verhalten der Form

$$|p - p_{crit}|^{-\beta} \sim t_{fluc}, \quad (12.2)$$

wie es in der Renormierungstheorie nach Wilson vorkommt. Dabei ist p der Kontrollparameter und β der sogenannte kritische Exponent. Da die Modenkorrelationszeiten mit wachsender Korrelationszeit t_{fluc} der Fluktuationen abnehmen (vgl. Abschnitt 2.3), bedeutet dies eine sehr geringe Modenkorrelationszeit an der Stelle $(P/\Delta\lambda)_{crit}$. Aus dem Anstieg der Modenkorrelationszeiten für

$(P/\Delta\lambda) > (P/\Delta\lambda)_{crit}$, der in Abbildung (12.1) deutlich zu erkennen ist, kann in Analogie zu Gleichung (12.2) möglicherweise eine ähnliche Renormierung der Form

$$|(P/\Delta\lambda) - (P/\Delta\lambda)_{crit}|^{-\beta} \times t_{mode} = const. \quad (12.3)$$

vorgenommen werden. Dies wäre zugleich eine äußerst interessante Perspektive im Zusammenhang mit der Theorie nichtlinearer Fluktuations - Dissipations - Relationen.

12.2 Verhalten bei hohen spektralen Leistungsdichten

Bei erhöhter spektraler Leistungsdichte nimmt die Modenkorrrelationszeit ab und erreicht schließlich einen konstanten Wert. Dieser Wert wurde in verschiedenen Meßserien reproduziert, obwohl das Lasersystem jeweils neu justiert wurde. Für hohe spektrale Leistungsdichten ergab sich als Grenzwert für die Modenkorrrelationszeit $t_{mode} = (95 \pm 5) \mu\text{sec}$. Die Unabhängigkeit dieses Grenzwertes von der Feinjustierung des Laserresonators weist auf Eigenschaften des Lasersystems hin, die sich während der durchgeführten Experimente nicht änderten. Abbildung (12.6) zeigt die gemessenen Modenkorrrelationszeiten als Funktion hoher spektraler Leistungsdichten.

Die Fehleranalyse der Modenkorrrelationszeiten ergab statistisch signifikante Unterschiede bezüglich der beiden untersuchten Absorptionslinien. (Solche Unterschiede wurden bei geringen spektralen Leistungsdichten nicht festgestellt. Dort stimmen die Modenkorrrelationszeiten innerhalb ihrer Fehlergrenzen überein.) Aus diesem Grund ist in Abbildung (12.6) lediglich die Modenkorrrelationszeit aus einer der beiden H_2O - Linien (Nr. 198) dargestellt.

Außer der Konvergenz der Modenkorrrelationszeiten bei Erhöhung der spektralen Leistungsdichten zeigt Abbildung (12.6) eine Struktur, die als unperiodische Oszillation von t_{mode} als Funktion von $P/\Delta\lambda$ charakterisiert werden kann. Die Modenkorrrelationszeiten bei Linie Nr. 199 ergeben eine identische Struktur. Dieses Verhalten kann mit Hilfe der selbstbezüglichen Rückkoppelungsschleifen nach Abbildung (10.1b) interpretiert werden. Analog zu der anschaulichen Erklärung der

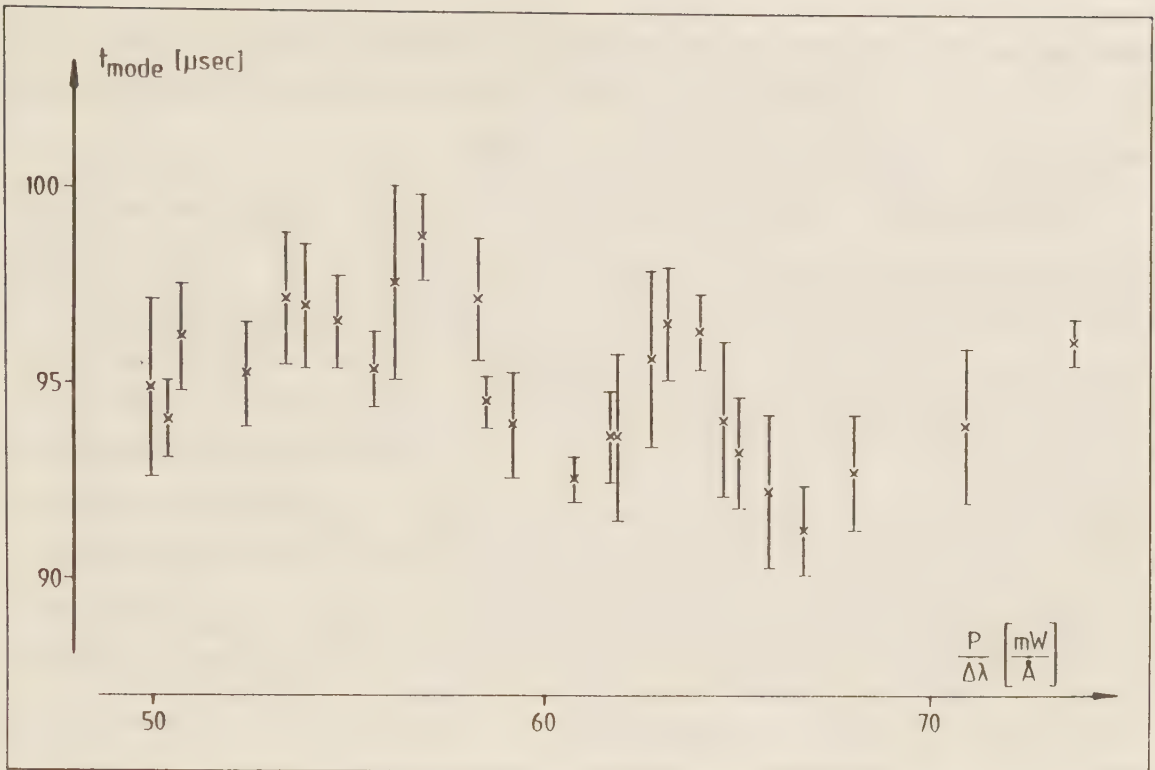


Abbildung 12.6: Modenkorrrelationszeit t_{mode} im Bereich hoher spektraler Leistungsdichten ($P/\Delta\lambda$). Wie im Text näher begründet wird, sind lediglich die Modenkorrrelationszeiten bezüglich einer Absorptionslinie mit ihren Standardfehlern aufgetragen.

Diskontinuitäten der Modenkorrrelationszeiten bei geringen spektralen Leistungsdichten (Abschnitt 12.1) können die lokalen Maxima und Minima der Modenkorrrelationszeiten in Abbildung (12.6) mit kritischen Werten von $P/\Delta\lambda$ identifiziert werden. Da der Einfluß von Fluktuationen auf die Modenamplituden groß im Vergleich zur Situation bei geringen spektralen Leistungsdichten ist, werden die diskreten Sprünge “verschmiert”.

Die Analyse der fraktalen Dimensionalität D des Systems ergibt im Bereich hoher spektraler Leistungsdichten einen Wert von ca. 2.7. Das System ist demnach bei hohen spektralen Leistungsdichten niedrig - dimensional. In diesem Fall bietet sich als naheliegende Interpretation der Effekt des “spatial hole burning” an, der in linearen Laserresonatoren bei großen Leistungen auftritt. Als Folge des “spatial hole burning” entsteht eine strenge Kopplung aller Moden, so daß keine Moden unabhängig voneinander oszillieren. Die Modenamplitude trägt lediglich einen Freiheitsgrad zum Gesamtsystem bei. Die starke Modenkopplung im Fall von “spatial hole burning” kann darüber hinaus bewirken, daß der Absorberfrei-

heitsgrad an der Stelle von Absorptionslinien adiabatisch eliminierbar wird. Auf diese Weise ist zu verstehen, daß im Bereich hoher spektraler Leistungsdichten sowohl D_{max} als auch D_{dip} zwischen 2 und 3 liegen.

Die Kolmogorov - Entropie K liegt im Bereich hoher spektraler Leistungsdichte bei 4250 sec^{-1} (vgl. Abbildung (11.5)). Der Wert von K^{-1} als Maß für die Korrelationszeit τ_{corr} ergibt sich daraus zu $235 \mu\text{sec}$. Die gemessene Modenkorrelationszeit $t_{mode} \simeq 95 \mu\text{sec}$ ist damit deutlich geringer als τ_{corr} . Die Modenkorrelationszeit wird folglich durch t_{fp} bestimmt (Fall (4a) in Abschnitt 10.1). Im Grunde heißt dies, daß das Attraktorkonzept bei hohen spektralen Leistungsdichten an Relevanz verliert. Es ist nicht mehr sinnvoll, zwischen unterschiedlichen Potentialtälern zu unterscheiden, da die trennenden Potentialwälle durch Fluktuationen überbrückt werden. Die Multistabilität des Systems im Sinne von Abschnitt 8.4 kann im Bereich hoher spektraler Leistungsdichten als entartet betrachtet werden.

Literatur

1. Abraham, N. B. (1983), "A new focus on laser instabilities and chaos", *Laser Focus*, May 1983, 73
2. Abraham, N. B., Lugiato, L. A. and Narducci, L. M. (1985), "Overview of instabilities in laser systems", *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 7
3. Aizawa, Y. (1982), "Global aspects of the dissipative dynamical systems I", *Prog. Theor. Phys.* **68**, 64
4. Aizawa, Y. and Uezu, T. (1982), "Global aspects of the dissipative dynamical systems II", *Prog. Theor. Phys.* **68**, 1864
5. Antipov, A. B., Bykov, A. D., Kapitanov, V. A., Lopasov, V. P., Makushkin, Yu. S., Tolmachev, V. I., Ulenikov, O. N. and Zuev, V. E. (1981), "Water - vapor absorption spectrum in the 0.59 μm region", *J. Mol. Spectrosc.* **89**, 449
6. Antonov, E. N., Koloshnikov, V. G. and Mironenko, V. R. (1975), "Quantitative measurement of small absorption coefficients in intracavity absorption spectroscopy using a cw dye laser", *Opt. Commun.* **15**, 99
7. Antonov, E. N., Berik, E. B. and Koloshnikov, V. G. (1979), "Intracavity laser detection of ammonia and methane absorption spectra in the region of 6000 - 6500 $\text{\AA}$ ", *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer* **22**, 45
8. Antonov, E. N., Antsyferov, P. S., Kachanov, A. A. and Koloshnikov, V. G. (1982), "Parasitic selection in intracavity laser detection spectroscopy", *Opt. Commun.* **41**, 131
9. Antonov, E. N., Kachanov, A. A., Mironenko, V. R. and Plakhotnik, T. V. (1983), "Dependence of the sensitivity of intracavity laser spectroscopy on generation parameters", *Opt. Commun.* **46**, 126
10. Arecchi, F. T., Meucchi, R., Puccioni, G. and Tredicce, J. (1982), "Experimental evidence of subharmonic bifurcations, multistability, and turbulence in a Q-switched gas laser", *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1217
11. Arecchi, F. T., Badii, R. and Politi, A. (1984), "Scaling of first passage

times for noise induced crises", *Phys. Lett.* **103A**, 3

12. Arimondo, E. and Oka, T. (1982), "Study of microwave transitions in intracavity absorbers with the use of off - resonance response of infrared lasers", *Phys. Rev. A* **26**, 1494
13. Arimondo, E., Casagrande, F., Lugiato, L. A. and Glorieux, P. (1983), "Repetitive passive Q - switching and bistability in lasers with saturable absorbers", *Appl. Phys. B* **30**, 57
14. Atkinson, G. H., Laufer, A. H. and Kurylo, M. J. (1973), "Detection of free radicals by an intracavity dye laser technique", *J. Chem. Phys.* **59**, 350
15. Atkinson, G. H., Heimlich, T. N. and Schuyler, M. W. (1977), "Quantitative intracavity laser detection of NO₂ by optical multichannel analysis", *J. Chem. Phys.* **66**, 5005
16. Atmanspacher, H., Scheingraber, H. and Vidal, C. R. (1985), "Dynamics of laser intracavity absorption", *Phys. Rev. A*, **32**, 254
17. Baev, V. M., Werncke, W. and Sviridenko, E. A. (1975a), "Detection of Raman amplification lines by intracavity laser spectroscopy", *Sov. J. Quant. Electron.* **5**, 477 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **2**, 856)
18. Baev, V. M., Gulov, V. Ya., Sviridenko, E. A. and Frolov, M. P. (1975b), "Measurement of the absorption spectrum of atmospheric air in the 5850 - 5930 Å range by intracavity laser spectroscopy", *Sov. J. Quant. Electron.* **5**, 724 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **2**, 1328)
19. Baev, V. M., Belikova, T. P., Sviridenko, E. A. and Suchkov, A. F. (1978), "Intracavity laser spectroscopy with continuously and quasicontinuously operating lasers", *Sov. Phys. JETP* **47**, 21 (*Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **74**, 43)
20. Baev, V. M., Belikova, T. P., Kovalenko, S. A., Sviridenko, E. A. and Suchkov, A. F. (1980), "Transient processes manifested in the emission spectra of cw wide-band dye lasers used for intracavity laser spectroscopy", *Sov. J. Quant. Electron.* **10**, 517 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **7**, 903)
21. Baev, V. M., Gaida, G., Schröder, H. and Toschek, P. E. (1981), "Quantum

fluctuations of a multimode laser oscillator", Opt. Commun. **38**, 309

22. Baev, V. M., Belikova, T. P., Gamalii, V. F., Sviridenko, E. A. and Suchkov, A. F. (1984), "Direct determination of the two - photon absorption cross section by the intracavity laser spectroscopy method", Sov. J. Quant. Electron. **14**, 1596 (Kvant. Elektron. (Moscow) **11**, 2413)
23. Barenblatt, G. I. (1978), *Similarity, Self - Similarity, and Intermediate Asymptotics* (Consultants Bureau, New York)
24. Basov, N. G., Morozov, V. N. and Oraewskij, A. N. (1966), "Nonlinear mode interaction in lasers", Sov. Phys. JETP **22**, 622 (Zh. Eksp. Teor. Fiz. **49**, 895 (1965))
25. Batische, S. A., Mostovnikov, V. A. and Rubinov, A. N. (1976), "High - resolution spectroscopy of weakly absorbing objects on a competing beam method", Sov. J. Quant. Electron. **6**, 1386 (Kvant. Elektron. (Moscow) **3**, 2516)
26. Belikova, T. P., Sviridenko, E. A., Suchkov, A. F., Titova, L. V. and Churilov, S. S. (1972), "Detection of weak absorption lines with the aid of a neodymium - glass laser", Sov. Phys. JETP **35**, 1076 (Zh. Eksp. Teor. Fiz. **62**, 2060)
27. Belikova, T. P., Dorofeev, B. K., Sviridenko, E. A. and Suchkov, A. F. (1975), "Measurement of the absolute absorption coefficient by intracavity laser spectroscopy", Sov. J. Quant. Electron. **5**, 722 (Kvant. Elektron. (Moscow) **2**, 1325)
28. Benettin, G., Galgani, L. and Strelcyn, J.-M. (1976), "Kolmogorov entropy and numerical experiments", Phys. Rev. A **14**, 2338
29. Bertalanffy, L. v. (1968), *General System Theory: Foundations, Development, Applications* (Braziller, New York)
30. Bray, R. G., Henke, W., Liu, S. K., Reddy, K.V. and Berry, M. J. (1977), "Measurement of highly forbidden optical transitions by intracavity cw dye laser spectroscopy", Chem. Phys. Lett. **47**, 213
31. Bray, R. G. and Berry, M. J. (1979), "Intramolecular rate processes in highly

vibrationally excited benzene", J. Chem. Phys. **71**, 4909

32. Brink, G. O. (1981), "Dye laser intracavity absorption for molecular spectroscopy", J. Mol. Spectrosc. **90**, 353
33. Brink, G. O. and Heider, S. M. (1981), "Observation in a discharge of short-lived atomic states by intracavity absorption", Opt. Lett. **6**, 366
34. Brink, G. O. (1984), "Absorption spectrum of the fourth overtone of the OH stretch in gaseous methanol", J. Mol. Spectrosc. **103**, 295
35. Brunner, W., Fischer, R. and Paul, H. (1985), "Regular and chaotic behaviour of multimode lasers", J. Opt. Soc. Am. B **2**, 202
36. Brunner, W. and Paul, H. (1974), "On the theory of selective intracavity absorption", Opt. Commun. **12**, 252
37. Brunner, W. and Paul, H. (1978), "Theory of intracavity absorption spectroscopy", Opt. Quant. Electron. **10**, 139
38. Burakov, V. S., Misakov, P. Ya., Naumenkov, P. A., Nechaev, S. V. and Raikov, S. N. (1978), "Fluorescent detection of narrow absorption lines in intracavity atomic spectroscopy", J. Appl. Spectrosc. **28**, 285 (Zh. Prikl. Spekt. **28**, 413)
39. Burakov, V. S. (1981), "Development of intracavity laser spectroscopy", J. Appl. Spectrosc. **35**, 843 (Zh. Prikl. Spekt. **35**, 223)
40. Burakov, V. S., Verenik, V. N., Malashonok, V. A., Naumenkov, P. A., Nechaev, S. V. and Puko, R. A. (1982), "Determination of trace aluminium and calcium impurities by intracavity spectroscopy", J. Appl. Spectrosc. **37**, 869 (Zh. Prikl. Spekt. **37**, 197)
41. Burch, D. E. and Gryvnak, D. A. (1969), "Strengths, widths and shapes of the oxygen lines near $13,100\text{ cm}^{-1}$ ", Appl. Opt. **8**, 1493
42. Callen, H. B. and Welton, T. A. (1951), "Irreversibility and generalized noise", Phys. Rev. **83**, 34
43. Chen, K.-M., Khoo, I. C., Steenhoek, L. E. and Yeung, E. S. (1977), "Doppler-free two-photon absorption spectroscopy of naphthalene", Opt. Commun. **23**, 90

44. Chen, K.-M., Steenhoek, L. E. and Yeung, E. S. (1978), "Resonance enhanced three - photon absorption of molecular iodine", *Chem. Phys. Lett.* **59**, 222
45. Chenevier, M., Melieres, M.-A. and Stoeckel, F. (1983), "Intracavity absorption line shapes and quantitative measurements on O_2 ", *Opt. Commun.* **45**, 385
46. Clark, J. H., Moore, C. B. and Reilly, J. P. (1978), "HCO radical kinetics: Conjunction of laser photolysis and intracavity dye laser spectroscopy", *Int. J. Chem. Kin.* **10**, 427
47. Crescenzi, F. and Shirk, J. S. (1977), "Imaged intracavity laser absorption spectroscopy", *Chem. Phys.* **20**, 331
48. Crescenzi, F. and Shirk, J. S. (1979), "Double beam intracavity laser spectrometers: I. Flash lamp pumped", *Opt. Commun.* **29**, 311
49. Dangoisse, D., Deldalle, A. and Glorieux, P. (1978), "Double resonance on the active medium of an optically pumped submillimeter laser: $HCOOH$ ", *J. Chem. Phys.* **69**, 5201
50. Dangoisse, D. and Glorieux, P. (1980), "Autler - Townes effect in a sub - mm laser interacting with a radiofrequency field", *Opt. Commun.* **32**, 246
51. Datta, S., Anderson, R. W. and Zare, R. N. (1975), "Laser isotope separation using an intracavity absorption technique" *J. Chem. Phys.* **63**, 5503
52. Davies, P. B. and Evenson, K. M. (1975), "Laser magnetic resonance spectroscopy of gaseous free radicals", in *Laser Spectroscopy*, Proc. 2nd Int. Conf. Laser Spectrosc. Megeve, eds. S. Haroche, J. C. Pebay - Peyroula, T. W. Haensch and S. E. Harris (Springer)
53. DeGiorgio, V. and Scully, M. O. (1970), "Analogy between the laser threshold region and a second - order phase transition", *Phys. Rev. A* **2**, 1170
54. Dutta, P. and Horn, P. M. (1981), "Low - frequency fluctuations in solids: $1/f$ noise", *Rev. Mod. Phys.* **53**, 497
55. Eckmann, J.-P. (1981), "Roads to turbulence in dissipative dynamical systems", *Rev. Mod. Phys.* **53**, 643

56. Eigen, M. and Winkler, R. (1975), *Das Spiel* (Piper, München)
57. d’Espagnat, B. (1976), *Conceptual Foundations of Quantum Mechanics* (Benjamin, Reading Ma.)
58. Ganiel, U., Hardy, A., Neumann, G. and Treves, D. (1975), “Amplified spontaneous emission and signal amplification in dye laser systems”, IEEE J. Quant. Electron. **QE-11**, 881
59. Geisel, T. and Nierwetberg, J. (1982), “Onset of diffusion and universal scaling in chaotic systems”, Phys. Rev. Lett. **48**, 7
60. Geisel, T., Nierwetberg, J. and Zacherl, A. (1985), “Accelerated diffusion in Josephson junctions and related chaotic systems”, Phys. Rev. Lett. **54**, 616
61. Gerstenkorn, S. and Luc, P. (1978), *Atlas du Spectre d’Absorption de la Molécule d’Iode* (Centre National de la Recherche Scientifique, Paris)
62. Gill, R. J. and Atkinson, G. H. (1979), “Wavelength dependence of HCO formation in the photolysis of the actaldehyde”, Chem. Phys. Lett. **64**, 426
63. Glansdorff, P. and Prigogine, I. (1971), *Thermodynamic Theory of Structure, Stability and Fluctuations* (Wiley & Sons, New York)
64. Graham, R. and Haken, H. (1970), “Laserlight - first example of a second - order phase transition far away from thermal equilibrium”, Z. Phys. **237**, 31
65. Grassberger, P. and Procaccia, I. (1983a), “Characterization of strange attractors”, Phys. Rev. Lett. **50**, 346
66. Grassberger, P. and Procaccia, I. (1983b), “Estimation of the Kolmogorov entropy from a chaotic signal”, Phys. Rev. A **28**, 2591
67. Grossmann, S. and Fujisaka, H. (1982), “Diffusion in discrete nonlinear dynamical systems”, Phys. Rev. A **26**, 1779
68. Haensch, T. W., Schawlow, A. L. and Toschek, P. E. (1972), “Ultrasensitive response of a cw dye laser to selective extinction”, IEEE J. Quant. Electron. **QE-8**, 802

69. Haken, H. (1975), "Analogy between higher instabilities in fluids and lasers", *Phys. Lett.* **53A**, 77
70. Haken, H. (1983a), *Synergetics. An Introduction* (Springer, Berlin)
71. Haken, H. (1983b), *Advanced Synergetics* (Springer, Berlin)
72. Haken, H. (1983c), *Laser Theory* (Springer, Berlin)
73. Harris, S. J. (1979), "Continuous wave intracavity dye laser spectroscopy: Dependence of enhancement on pumping power", *J. Chem. Phys.* **71**, 4001
74. Harris, S. J. and Weiner, A. M. (1981), "Continuous wave intracavity dye laser spectroscopy. II. A parametric study", *J. Chem. Phys.* **74**, 3673
75. Harris, S. J. (1982), "Power dependence of continuous - wave intracavity spectroscopy", *Opt. Lett.* **7**, 497
76. Harris, S. J. (1984), "Intracavity laser spectroscopy: An old field with new prospects for combustion diagnostics", *Appl. Opt.* **23**, 1311
77. Harris, T. D. and Mitchell, J. W. (1980), "Sub - part - per - billion iron determination by laser intracavity absorption spectrometry", *Anal. Chem.* **52**, 1706
78. Harris, T. D. (1983), "Laser Intracavity - Enhanced Spectroscopy", in *Ultraviolet Laser Spectroscopy*, ed. D. S. Kliger (Academic Press, New York)
79. Hausdorff, F. (1919), "Dimension und äußeres Maß ", *Math. Ann.* **79**, 157
80. Hill, W. T., Abreu, R. A., Haensch, T. W. and Schawlow, A. L. (1980), "Sensitive intracavity absorption at reduced pressures", *Opt. Commun.* **32**, 96
81. Hillman, L. W., Kraszinski, J., Boyd, R. W. and Stroud jr., C. R. (1984), "Observation of higher order dynamical states of a homogeneous broadened laser", *Phys. Rev. Lett.* **52**, 1605
82. Hofstadter, D. R. (1979), *Gödel, Escher, Bach - an Eternal Golden Braid* (Basic Books, New York)
83. Hohimer, J. P. and Hargis jr., P. J. (1979), "Intracavity absorption with

- external fluorescence measurement for detection of radioiodine isotopes", *Anal. Chem.* **51**, 930
84. Holt, H. K. (1975), "Laser intracavity absorption", *Phys. Rev. A* **11**, 625
 85. Ioli, N., Moretti, A., Moruzzi, G., Roselli, P. and Strumia, F. (1984), "Intracavity triple resonance spectroscopy in the CH₃OH far - infrared laser", *J. Mol. Spectrosc.* **105**, 284
 86. Jantsch, E. (1982), *Die Selbstorganisation des Universums* (dtv, München)
 87. Johns, J. W. C. and McKellar, A. R. W. (1975), "Stark spectroscopy with the CO laser: The dipole moment of H₂CO in the $\nu_2 = 2$ state", *J. Chem. Phys.* **63**, 1682
 88. Kachanov, A. A. and Plakhotnik, T. V. (1983), "Intracavity spectrometer with a ring - travelling - wave dye laser: Reduction of detection limit", *Opt. Commun.* **47**, 257
 89. Keller, R. A., Zalewski, E. F. and Peterson, N. C. (1972), "Enhancement of absorption spectra by dye - laser quenching, II", *J. Opt. Soc. Am.* **62**, 319
 90. Keller, R. A., Nogar, N. S. and Bomse, D. S. (1983), "Photoacoustic detection of intracavity absorption", *Appl. Opt.* **22**, 3331
 91. Kovalenko, S. A. (1981), "Quantum intensity fluctuations in multimode cw lasers and maximum sensitivity of intracavity laser spectroscopy", *Sov. J. Quant. Electron.* **11**, 759 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **8**, 1271)
 92. Kowalski, J., Neumann, R., Suhr, H., Winkler, K. and zu Putlitz, G. (1978), "Two - photon intracavity dye laser spectroscopy of the 4S and 3D term in ^{6,7}Li", *Z. Physik A* **287**, 247
 93. Krupenie, P. H. (1972), "The spectrum of molecular oxygen", *J. Phys. Chem. Ref. Data* **1**, 423
 94. Landau, L. D. and Lifschitz, E. M. (1979), *Statistische Physik I* (Akademie, Berlin)
 95. Lax, M. (1967), "Quantum noise VII: The rate equations and amplitude noise in lasers", *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-3**, 37

96. Lax, M. (1968), "Fluctuation and Coherence Phenomena in Classical and Quantum Physics", in *Statistical Physics, Phase Transitions and Superfluidity, Vol. 2*, Brandeis Univ. Summer Institute in Theoret. Physics, 1966, eds. M. Crétien, E. P. Gross and S. Deser (Gordon & Breach, New York)
97. Loloe, M. R., Heider, S. M. and Brink, G. O. (1984), "Intracavity absorption in a double - cavity dye laser", *Appl. Opt.* **23**, 100
98. Lorenz, E. N. (1963), "Deterministic nonperiodic flow", *J. Atmos. Sci.* **20**, 130
99. Lugiato, L. A. and Narducci, L. M. (1985), "Single - mode and multimode instabilities in lasers and related optical systems", *Phys. Rev. A* **32**, 1576
100. Maeda, M., Ishitsuka, F. and Miyazoe, Y. (1977), "Quantitative detection of atomic absorption by intracavity dye laser - quenching", *Appl. Opt.* **16**, 403
101. Mak, A. A., Orlov, O. A. and Ustyugov, V. I. (1982), "Modulation intracavity laser spectroscopy, polarimetry, and interferometry", *Sov. J. Quant. Electron.* **12**, 1574 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **9**, 2412)
102. Mandelbrot, B. B. (1977), *Fractals - Form, Chance, and Dimension* (Freeman, San Francisco)
103. Manneville, P. (1980), "Intermittency, self - similarity, and $1/f$ spectrum in dissipative dynamical systems", *J. Physique* **41**, 1235
104. Meyer, Y. H. and Flamant, P. (1976), "A basic property of dye lasers: Spectral evolution", *Opt. Commun.* **19**, 20
105. Miller, J. H., Boese, R. W. and Giver, L. P. (1969), "Intensity measurements for the oxygen A - band", *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer* **9**, 1507
106. Mironenko, V. R. and Pack, I. (1978), "Influence of saturation absorption on the sensitivity of intracavity spectroscopy", *Sov. J. Quant. Electron.* **8**, 1394 (*Kvant. Elektron. (Moscow)* **5**, 2476)
107. Mironenko, V. R. and Yudson, V. I. (1980), "Quantum noise in intracavity laser spectroscopy", *Opt. Commun.* **34**, 397

108. Moore, C. E., Minnaert, M. G. J. and Houtgast, J. (1966), *The Solar Spectrum 2935 Å to 8770 Å*, Ntl. Bur. Stand. Mon. **61**
109. Morgan, F. J., Dugan, C. H. and Lee, A. G. (1978), "Laser intracavity absorption: A numerical and experimental study with a pulsed dye laser", *Opt. Commun.* **27**, 451
110. Newhouse, S., Ruelle, B. and Takens, F. (1978), "Occurrence of Strange Axiom A Attractors Near Quasi Periodic Flows on $T^m, m \geq 3$ ", *Comm. Math. Phys.* **64**, 35
111. Nicolis, G. and Prigogine, I. (1977), *Self - Organization in Nonequilibrium Systems* (Wiley & Sons, New York)
112. Oka, T. (1982), "Intracavity infrared - microwave double - resonance spectroscopy", *Philos. Trans. R. Soc. London A* **307**, 591
113. Onsager, L. (1931), "Reciprocal relations in irreversible processes I.", *Phys. Rev.* **37**, 405
114. Oseledec, V. I. (1968), "A multiplicative ergodic theorem. Ljapunov characteristic numbers for dynamical systems", *Trans. Mosc. Math. Soc.* **19**, 197 (*Tr. Mosk. Mat. Obsch.* **19**, 179)
115. Packard, N. H., Crutchfield, J. P., Farmer, J. D. and Shaw, R. S. (1980), "Geometry from a time series", *Phys. Rev. Lett.* **45**, 712
116. Pakhomycheva, L. A., Sviridenko, E. A., Suchkov, A. F., Titova, L. A. and Churilov, S. S. (1970), "Line structure of generation spectra of lasers with inhomogeneous broadening of the amplification line", *Sov. Phys. JETP Lett.* **12**, 43 (*Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **12**, 60)
117. Peterson, N. C., Kurylo, M. J., Braun, W., Bass, A. M. and Keller, R. A. (1971), "Enhancement of absorption spectra by dye - laser quenching", *J. Opt. Soc. Am.* **61**, 746
118. Press, W. H. (1978), "Flicker noises in astronomy and elsewhere", *Comm. Mod. Phys. C: Comm. Astroph.* **7**, 103
119. Prigogine, I. (1945), "Modération et transformations irréversibles des systèmes ouverts", *Bull. Cl. Sci., Acad. Roy. Belg.* **31**, 600

120. Procaccia, I. (1985), "The static and dynamic invariants that characterize chaos and the relations between them in theory and experiments", *Phys. Scr.* **T9**, 40
121. Radloff, W. and Ritze, H.-H. (1979), "Doppler - free intracavity polarization spectroscopy using elliptically polarized light", *Appl. Phys.* **20**, 247
122. Radloff, W. and Ritze, H.-H. (1980), "Competition effects in Doppler - free intracavity polarization spectroscopy", *Opt. Commun.* **35**, 203
123. Reilly, J. P., Clark, J. H., Moore, C. B. and Pimentel, G. C. (1978), "HCO production, vibrational relaxation, chemical kinetics, and spectroscopy following laser photolysis of formaldehyde", *J. Chem. Phys.* **69**, 4381
124. Sarkisov, O. N. and Sviridenko, E. A. (1981), "Intracavity laser spectroscopy and its applications for studying chemical reactions", *J. Appl. Spectrosc.* **35**, 1184 (*Zh. Prikl. Spekt.* **35**, 775)
125. Schlapp, R. (1932), "Intensities in singlet - triplet bands of diatomic molecules", *Phys. Rev.* **39**, 806
126. Schröder, H., Neusser, H. J. and Schlag, E. W. (1975), "The temporal development of intracavity absorption in a dye laser", *Opt. Commun.* **14**, 395
127. Shaw, R. (1981), "Strange attractors, chaotic behaviour, and information flow", *Z. Naturforsch.* **36a**, 80
128. Silvera, I. F. and Tommasini, F. (1976), "Intracavity Raman scattering from molecular beams: Direct determination of local properties in an expanding jet beam", *Phys. Rev. Lett.* **37**, 136
129. Singh, S. (1984), "Statistical properties of single - mode and two - mode ring lasers", *Phys. Rep.* **108**, 217
130. Smith, W. H. and Gelfand, J. (1980), "Quantitative laser photoacoustic detector spectroscopy: HD 5-0 transitions", *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer* **24**, 15
131. Stella, G., Gelfand, J. and Smith, W. H. (1976), "Photoacoustic detection spectroscopy with dye laser excitation: The 6190 Å CH₄ and the 6450 Å

NH₃ bands", Chem. Phys. Lett. **39**, 146

132. Stepanov, B. I., Rubinov, A. N. and Belokon, M. V. (1976), "Selective intracavity spectroscopy for lasers with homogeneous spectral broadening", J. Appl. Spectrosc. **24**, 293 (Zh. Prikl. Spekt. **24**, 423)
133. Stoeckel, F., Melieres, M.-A. and Chenevier, M. (1982), "Quantitative measurements of very weak H₂O absorption lines by time resolved intracavity laser spectroscopy", J. Chem. Phys. **76**, 2191
134. Stoeckel, F., Schuh, M. D., Goldstein, N. and Atkinson, G. H. (1985), "Time - resolved intracavity laser spectroscopy: 266 nm photodissociation of acetaldehyde vapor to form HCO", Chem. Phys. **95**, 135
135. Takens, F. (1981), "Detecting strange attractors in turbulence", in: *Lecture Notes in Mathematics* **898**, eds. D. A. Rand and L. S. Young (Springer, Berlin)
136. Thrash, R. J., Weyssenhoff, H. v. and Shirk, J. S. (1971), "Dye laser amplified absorption spectroscopy of flames", J. Chem. Phys. **55**, 4659
137. Tohma, K. (1976), "Intracavity absorption of dye lasers: A rate equation model", J. Appl. Phys. **47**, 1422
138. Unsöld, A. (1955), *Physik der Sternatmosphären* (Springer, Berlin)
139. Watson, J. K. G. (1968), "Rotational line intensities in $^3\Sigma - ^1\Sigma$ electronic transitions", Can. J. Phys. **46**, 1637
140. Weiss, C. O. (1984), "Chaotisches (turbulentes) Verhalten von Lasern", Laser und Optoelektronik, Nr.1, 41
141. Werncke, W., Klein, J., Lau, A., Lenz, K. and Hunsalz, G. (1974), "Investigation of inverse Raman scattering using the method of intra - cavity spectroscopy", Opt. Commun. **11**, 159
142. West, B. J. and Lindenberg, K. (1984), "Nonlinear fluctuation - dissipation relations", in: *Fluctuations and Sensitivity in Nonequilibrium Systems*, eds. W. Horsthemke and D. K. Kondepudi (Springer, Berlin)
143. Westling, L. A., Raymer, M. G., Sceats, M. G. and Coker, D. F. (1983), "Observation of intensity fluctuations and mode correlations in a broadband

cw dye laser", *Opt. Commun.* **47**, 212

- 144. Weyssenhoff, H. v. and Rehling, U. (1974), "Resonator - verstärkte Absorptionsspektroskopie in einem Farbstofflaser", *Z. Naturforsch.* **29**, 256
- 145. Wiener, N. (1948), *Cybernetics* (Wiley & Sons, New York)
- 146. Wilson, K. G. (1971), "Renormalization group and critical phenomena", *Phys. Rev. B* **4**, 3174
- 147. Zalewski, E. F., Keller, R. A. and Apel, C. T. (1981), "Optogalvanic effect as a detector for intracavity atomic absorption in a cw dye laser", *Appl. Opt.* **20**, 1584

Anhang

Zur Demonstration des Verfahrens der resonatorinternen Absorption wurden Wasserdampf - Spektren im Wellenlängenbereich zwischen 588.5 nm und 592.1 nm aufgenommen. Diese Spektren sind zusammen mit den zugeordneten molekularen Übergängen auf den folgenden Seiten zusammengestellt.

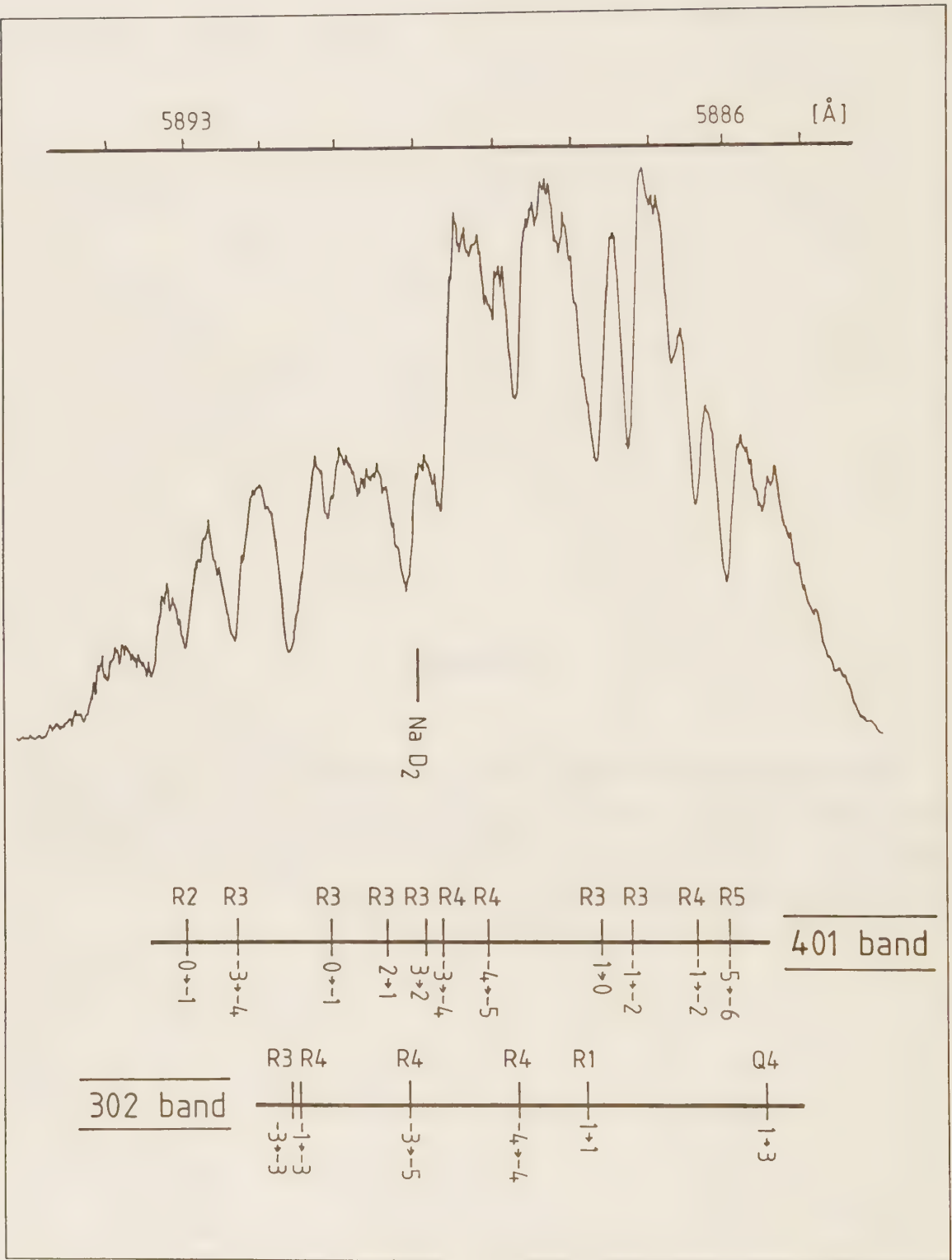


Abbildung A-1: Resonatorinterne Absorption von H₂O im Wellenlängenbereich zwischen 588.5 nm und 589.4 nm.

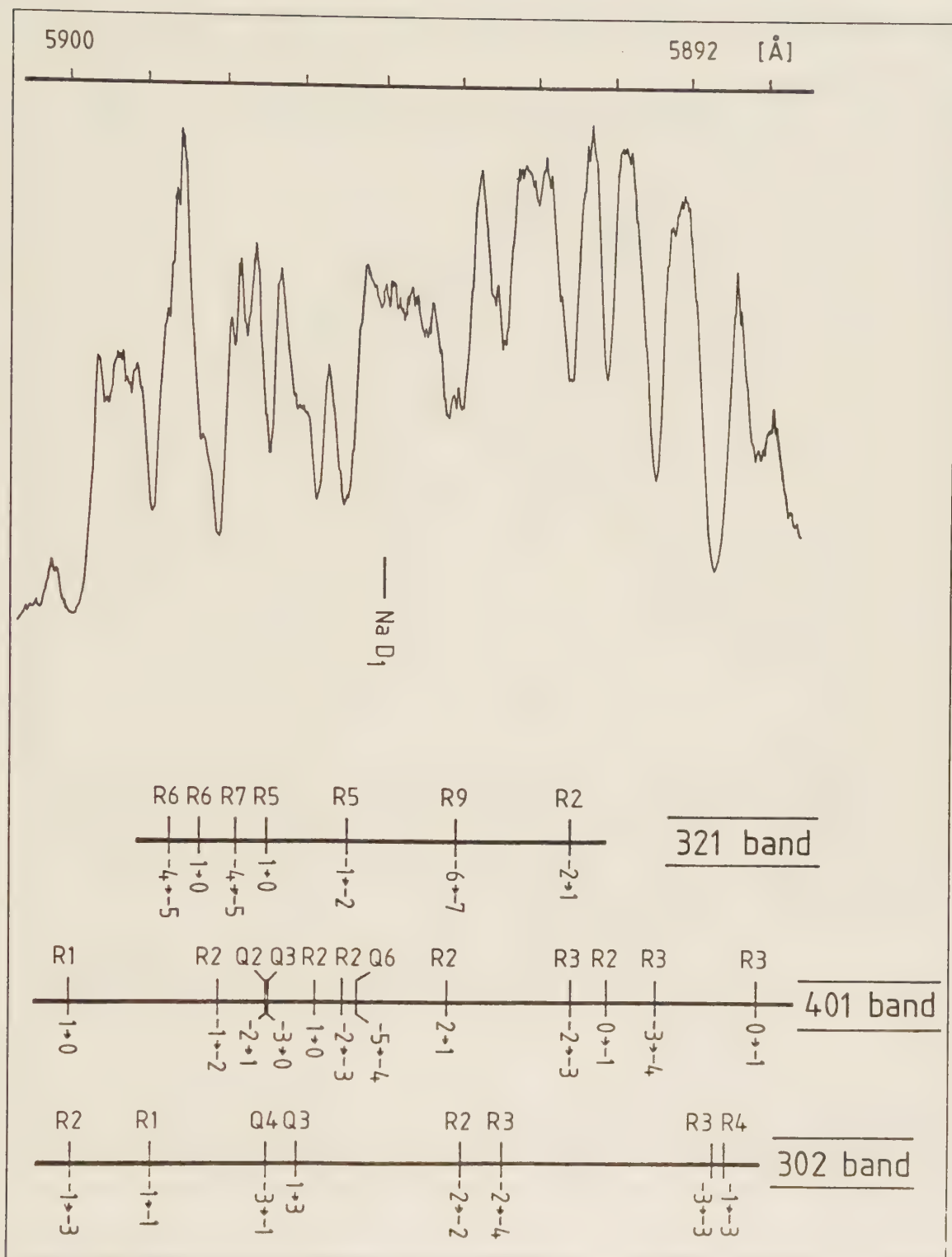


Abbildung A-2: Resonatorinterne Absorption von H₂O im Wellenlängenbereich zwischen 589.1 nm und 590.0 nm.

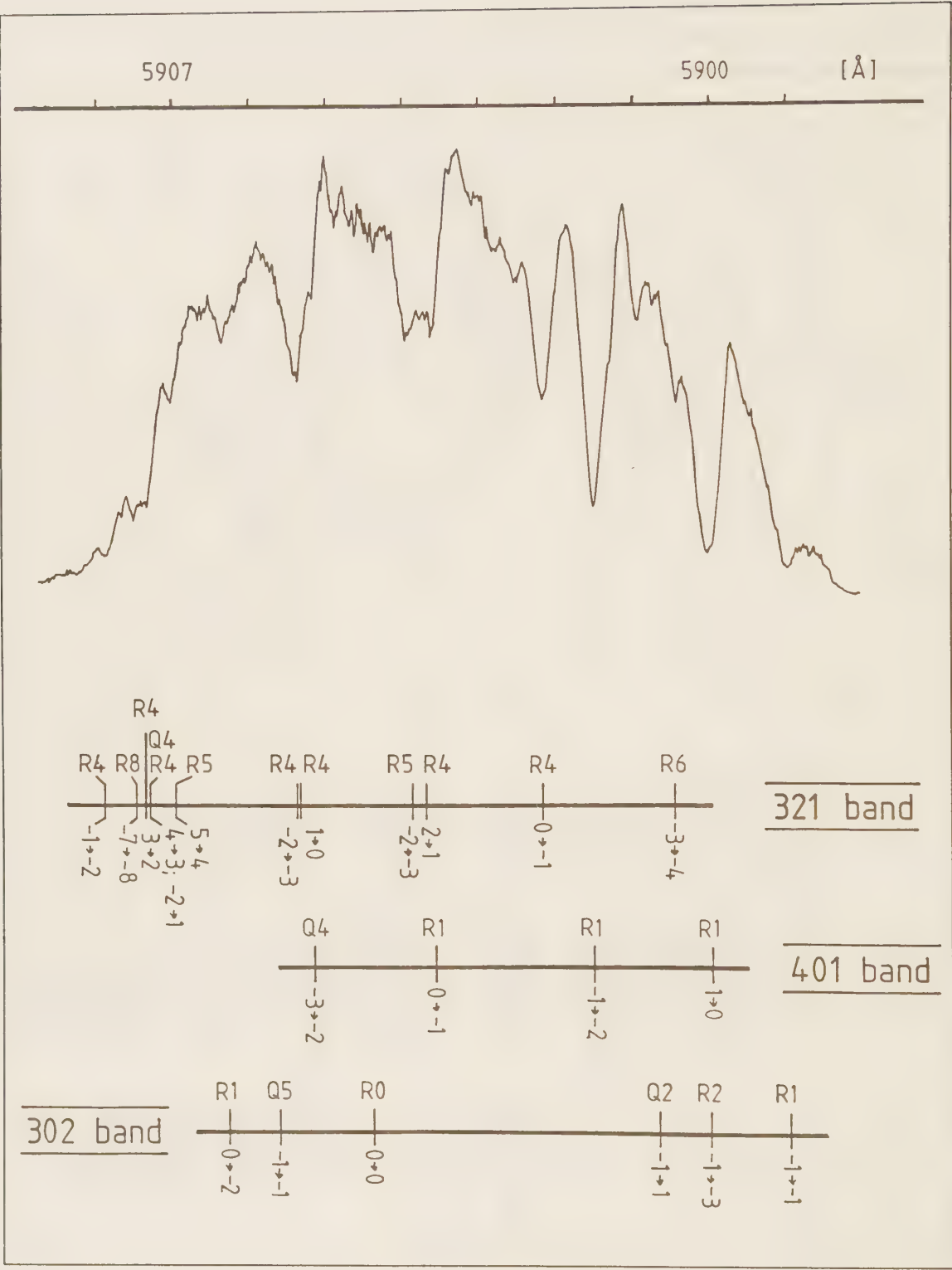


Abbildung A-3: Resonatorinterne Absorption von H₂O im Wellenlängenbereich zwischen 589.9 nm und 590.8 nm.

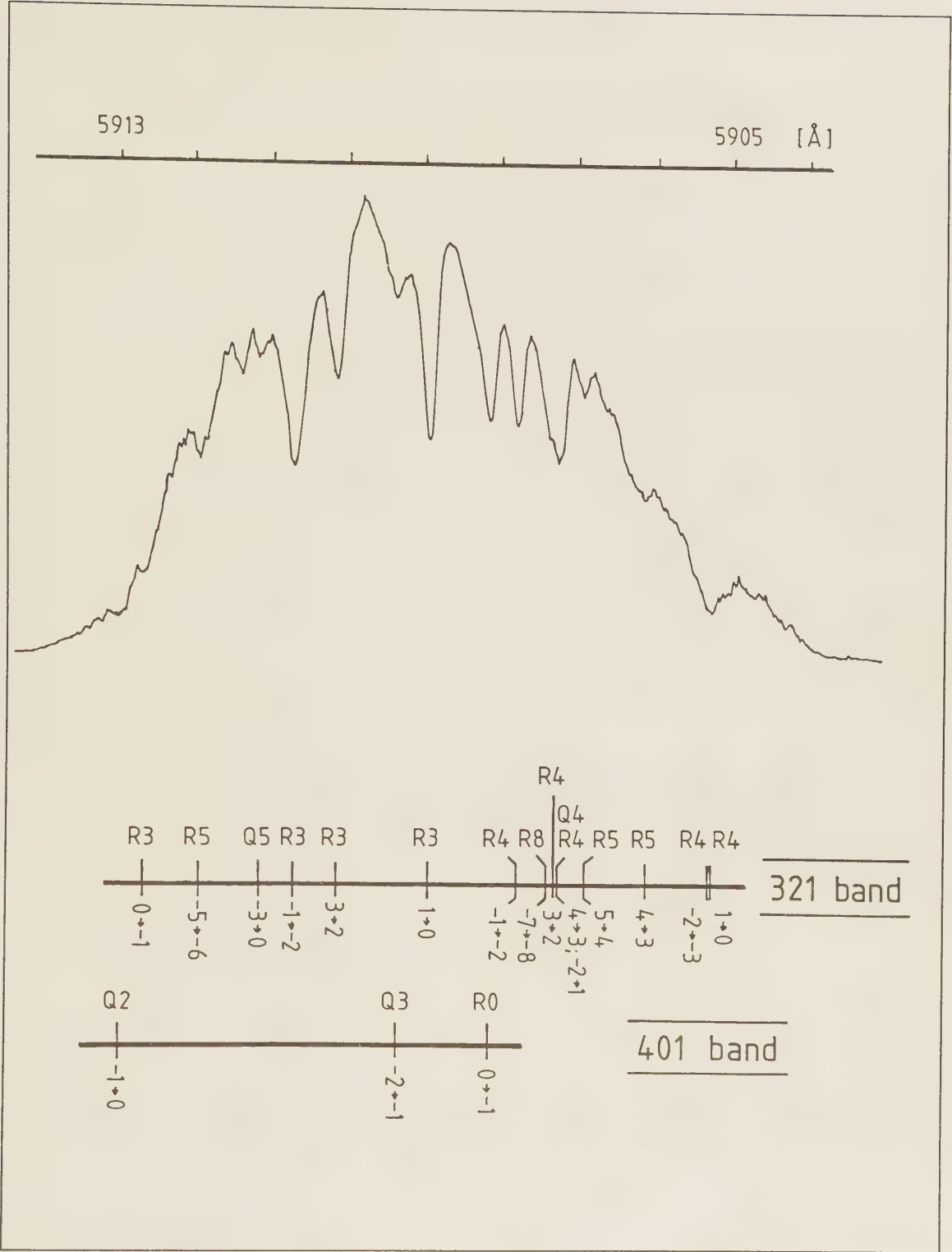


Abbildung A-4: Resonatorinterne Absorption von H₂O im Wellenlängenbereich zwischen 590.5 nm und 591.3 nm.

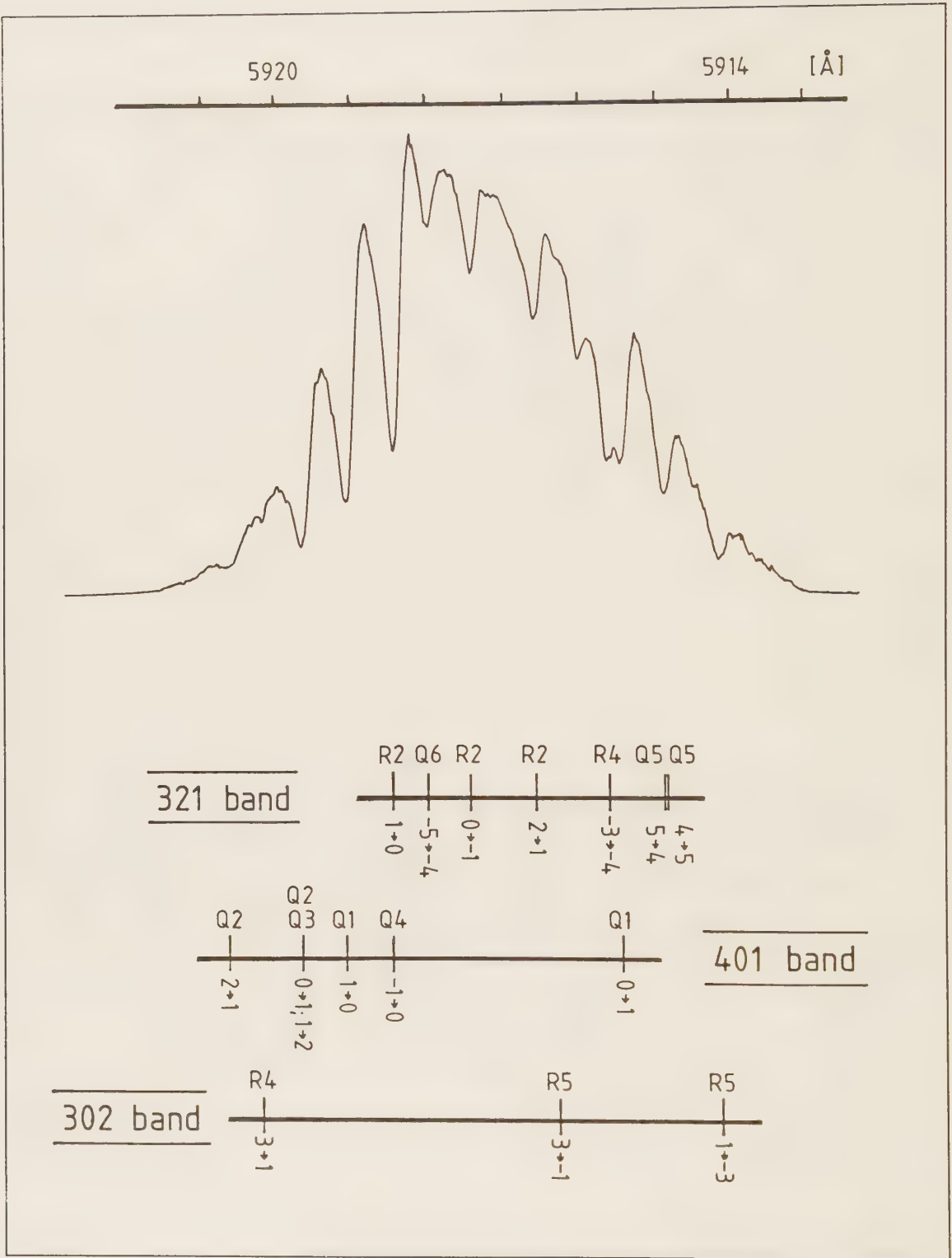


Abbildung A-5: Resonatorinterne Absorption von H₂O im Wellenlängenbereich zwischen 591.3 nm und 592.1 nm.

In mehrfacher Hinsicht stellt die vorliegende Arbeit ein Beispiel für das Phänomen der Selbstorganisation dar, wie sie für synergetische Systeme charakteristisch ist. Die Arbeit ist damit selbstähnlich bezüglich Form und Inhalt.

Im Lauf der vergangenen zwei Jahre, in denen die vorgestellten Untersuchungen durchgeführt worden sind, wurde einiges an gedanklicher Energie dissipiert. Dies ist natürlich ohne die entsprechenden Rahmenbedingungen unmöglich. Daher danke ich Prof. Dr. Joachim Trümper und Dr. Gerhard Haerendel, an deren Institut ich die Arbeit anfertigen durfte. Prof. Dr. Carl Rudolf Vidal lieferte die Startwerte, indem er das Thema des ersten Teils der Arbeit anregte. Dank des Freiraums, den er mir zur Verfügung stellte, konnte es zu dem "Phasenübergang" kommen, der vom ersten zum zweiten Teil der Arbeit führte. Der damit verbundene Symmetriebruch äußert sich klar in einer Verallgemeinerung der Betrachtungsweise. Einige der dort dargestellten Interpretationen entstammen einer fruchtbaren Diskussion mit Prof. Dr. Dr. Hermann Haken.

Viele der Fluktuationen, die für einen Phasenübergang erforderlich sind, wurden erst durch die Wechselwirkung mit Dr. Herbert Scheingraber kritisch verstärkt. Ohne seinen fachlichen und freundschaftlichen Rat wie seine tatkräftige Hilfe in ungezählten Gesprächen und bei verschiedenartigsten Gelegenheiten wäre die Arbeit in der vorliegenden Form nicht zustande gekommen.

Dr. Peter Klopotek und Dr. Rudolf Treumann verdanke ich wichtige Anregungen zur Dynamik dissipativer Strukturen. Für hilfreiche Kommentare und Unterhaltungen mit erfreulich interdisziplinärem Charakter bin ich Peter von Ballmoos, Heinrich Bunz, Alois Streck und Karl Heinz Strobl dankbar.

Für die schnelle und exakte Erledigung anfallender mechanischer Arbeiten danke ich Max Kittl.

Lebenslauf

26. 8. 1955	Geboren in Witzenhausen/Werra
1962 - 1966	Volksschule in Großalmerode
1966 - 1974	Freiherr vom Stein - Gymnasium in Lichtenau
Mai 1974	Abitur
1974 - 1976	Wehrdienst Gebirgsjägerbrigade 22 in Mittenwald
1976 - 1979	Physikstudium Universität Göttingen, Vordiplom 1978
1979 - 1980	Physikstudium ETH Zürich
1980 - 1983	Physikstudium Ludwig - Maximilians - Universität München
1982 - 1983	Diplomarbeit am MPE Garching: "Laserinduzierte Fluoreszenz von MgCa - Molekülen"
August 1983	Diplom in Physik an der Ludwig - Maximilians - Universität München
seit 1983	Doktorand am MPE Garching

